Paul E. Sterian · Nicolae N. Pușcaș

LASERI ȘI PROCESE MULTIFOTONICE

Paul E. Sterian *Nicolae N. Pușcaș*

LASERI
ȘI
PROCESE MULTIFOTONICE





EDITURA TEHNICĂ
București — 1988

PREFAȚĂ

Domeniile electronicii cuantice și opticii cuantice, aflate în plină dezvoltare în zilele noastre, fascinează prin rezultatele obținute privind descoperirea și evidențierea unor corelații dintre cele mai profunde, care guvernează mecanismele de interacție cîmp-substanță, efectele de coerență optică și atomică, pe care se fundamentează realizările inginerești imprevizibile ale opticii integrate, ce constituie elemente de referință pentru cele mai avansate tehnologii ale viitorului.

Produs și suport redutabil al acestor domenii, optica neliniară coerentă ocupă o poziție privilegiată în complexul interdisciplinar metodic al sinergeticii, prin rafinamentul soluțiilor pe care le oferă privind mecanismele intime ale proceselor de autoorganizare, învăluite încă parțial în mister. Totodată, o serie de comportări cooperative specifice acestor domenii, descrise prin interacții cu unul sau mai mulți fotoni, explicitate, de exemplu, prin superradianță, superfluorescență, ecoul fotonic, transparența autoindusă, bistabilitatea optică, precum și prin generarea de armonici optice și alte procese multifotonice, specifice spectroscopiei laser, se conturează ca elemente esențiale pentru noi salturi tehnologice, marcate de aplicații așteptate cu nerăbdare, cum ar fi tranzistorul optic, element de structură specific al arhitecturii calculatoarelor optice.

Problemele relativ critice ale omenirii, energia și comunicațiile, ocupă un loc central în cadrul cercetărilor privind aplicațiile electronicii cuantice, urmărindu-se cu îndreptățite așteptări controlul eficient al reacțiilor termonucleare cu ajutorul laserului sau cablarea optică a rețelelor de comunicații. Specialiștii își pun mari speranțe în prezent în utilizarea laserului în medicină și biologie pentru tratamentul cancerului și controlul evoluției speciilor.

Se poate aprecia că astăzi nu există domeniu al ingineriei unde laserul să nu fie aplicat pe scară largă.

În același timp, numeroase preocupări de cercetare fundamentală beneficiază din plin de aportul laserului.

Prin realizarea în țara noastră, în anul 1962 a laserului cu He-Ne (printre primele țări din lume care au construit astfel de dispozitive), R.S.România a contribuit la dezvoltarea electronicii cuantice încă de la începuturile sale, obținînd rezultate deosebite și în prezent. Nu întîmplător, una dintre conferințele de prestigiu ale Societății Europene de Fizică, „Trends in Quantum Electronics", se ține la fiecare trei ani în țara noastră, la Institutul Central de Fizică, anul acesta desfășurîndu-se a treia ediție. Bogata bibliografie a lucrării evidențiază rezultatele semnificative obținute de cercetătorii din țara noastră în acest domeniu.

Răspunzînd, prin problematica abordată, unor cerințe reale privind literatura de specialitate publicată, lucrarea, aparținînd electronicii și opticii cuantice, se adresează unui cerc larg de specialiști care lucrează în cercetare și proiectare, cadrelor didactice și studenților din învățămîntul superior, precum și altor categorii de cititori interesați în descifrarea problemelor fundamentale teoretice și aplicative ale acestor domenii, remarcabile prin eleganță și spectaculozitate, deosebit de fertile pentru ingineria și știința modernă.

Autorii

CUPRINS

I. BAZELE TEORETICE ALE INTERACȚIEI RADIAȚIEI CU SUBSTANȚA

1. INTERACȚIA RADIAȚIEI CU ATOMII INDIVIDUALI ȘI CU COLECTIVELE DE ATOMI

1.1 Introducere

Interacția cîmpului de radiație cu substanța poate fi descrisă în mai multe moduri, după cum unul sau ambele dintre sistemele aflate în interacție sînt sau nu cuantificate. Ca urmare, se deosebesc nivelele de descriere clasic, semicuantic (semiclasic) și cuantic (tabelul 1.1).

Tabelul 1.1

Nivelul de descriere	Cîmpul de radiație	Sistemul substanțial (atomi, molecule, cristale)
Clasic	Ecuațiile lui Maxwell	Ecuațiile lui Newton
Semicuantic	Ecuațiile lui Maxwell	Ecuația Schrödinger, cuantificarea a doua
Cuantic	Electrodinamica cuantică (cuantificarea cîmpului de radiație)	Ecuația Schrödinger, cuantificarea a doua

Fiecărui nivel de descriere îi sînt caracteristice mai multe formalisme cu diferite posibilități de analiză și interpretare a fenomenelor fizice. Astfel, în teoria cuantică a laserilor sînt cunoscute formalismele matricei densitate, precum și cele ale ecuațiilor Langevin cuantice sau Fokker-Planck. Corelația strînsă care există între formalismele caracteristice diferitelor nivele de descriere va fi evidențiată în capitolele 4–6 ale acestei lucrări. Se va arăta, de exemplu, că ecuațiile semicuantice ale laserilor pot fi obținute din ecuațiile cuantice prin mediere peste procesele de pompaj și relaxare.

În acest capitol se vor discuta unele aspecte fundamentale ale interacției radiației cu atomii individuali sau cu colectivele de atomi, privind probabilitățile de tranziție în cazul perturbațiilor armonice, tranzițiile de dipol electric, teoria lui Einstein asupra absorbției și emisiei radiației, ecuațiile generale semicuantice de mișcare pentru tranzițiile de dipol electric și ecuațiile Maxwell-Bloch etc.

Studiul acestor probleme este cerut de abordarea ulterioară a formalismelor de interacție cîmp-substanță specifice laserilor.

1.2. Probabilitatea de tranziție în cazul perturbațiilor armonice

Fie un sistem cuantic al cărui hamiltonian are forma

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{W}(t) \tag{1.1}$$

unde operatorul $\hat{W}(t)$ descrie o perturbație armonică

$$\hat{W}(\mathbf{r}, t) = \begin{cases} \hat{W}(\mathbf{r}) \cos \omega t, & t \geqslant 0 \\ 0, & t < 0 \end{cases} \tag{1.2}$$

$\hat{H}_0$ fiind hamiltonianul neperturbat al sistemului. (Pentru $\hat{W}(t)$ se mai utilizează notația $H_i(t)$ sau $H'(t)$).

Conform teoriei perturbațiilor dependente de timp, dacă la momentul $t_0 = 0$ sistemul se află în starea $|n>$ probabilitatea ca la momentul t sistemul să se găsească (în urma unei tranziții) în starea $|m>$, calculată în aproximația de ordinul întîi, are expresia :

$$P_{mn} = |c_m(t)|^2 = \frac{1}{\hbar^2} \left| \int_0^\infty W_{mn}\, e^{i\omega_{mn}t}\, dt \right|^2, \tag{1.3}$$

elementul de matrice W_{mn} al perturbației rezultînd din teoria generală a perturbațiilor dependente de timp (Anexa 3).

Prin evaluarea integralei (1.3) utilizîndu-se forma (1.2) a perturbației se obține

$$P_{mn} = \frac{|W_{mn}|^2}{4\hbar^2} \left| \frac{e^{i(\omega_{mn} - \omega)t} - 1}{\omega_{mn} - \omega} + \frac{e^{i(\omega_{mn} + \omega)t} - 1}{\omega_{mn} + \omega} \right|^2. \tag{1.4}$$

Ținîndu-se seama că termenii, *rezonant* (avînd $\omega = \omega_{mn}$) și *antirezonant* (avînd $\omega = -\omega_{mn}$) nu pot fi nuli simultan, cu excepția cazului limită $\omega_{mn} \to 0$ și neglijînd efectele de interferență dintre aceștia se obține

$$P_{mn} = \frac{|W_{mn}|^2}{4\hbar} \frac{\sin^2 \eta t}{\eta^2} \quad \text{unde} \quad \eta = \frac{\omega_{mn} \pm \omega}{2}. \tag{1.5}$$

Din dependența de frecvență a probabilității de tranziție prezentată în figura 1.1, rezultă *lărgimea de rezonanță* $\Delta\omega = 4\pi/t$ astfel încît pentru o perturbație de frecvență variabilă este satisfăcută relația de incertitudine

$$\Delta E = \hbar \Delta\omega \simeq \frac{h}{t} \tag{1.6}$$

care evidențiază *lărgimea finită* a valorilor proprii ale energiei corespunzătoare diferitelor stări proprii.

Rezultă că probabilitatea de tranziție din starea inițială E_n într-un grup de stări finale centrate în jurul lui $E_m > E_n$ (ne limităm la termenul

rezonant), are expresia

$$P_{mn} = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{|W_{nm}|^2}{\hbar} \frac{\sin^2 \frac{(\omega_{mn} - \omega) t}{2}}{(\omega_{mn} - \omega)^2} f(E)\, dE \qquad (1.7)$$

unde $f(E)$ reprezintă *densitatea de stări*.

În cazul unor variații lente ale mărimilor $|W_{mn}|^2$ și $f(E)$ funcție de starea finală, prin evaluarea integratei (1.7), se poate calcula rata probabilității de tranziție

$$w_{n \to m} = \frac{dP_{mn}}{dt} = \frac{|W_{mn}|^2}{2\hbar} f(E_m = E_n + \hbar\omega)\, \pi \qquad (1.8)$$

numită „regula de aur" a lui Fermi.

În domeniul frecvenței expresia (1.8) are forma

$$w_{m \to n} = \frac{|W_{mn}|^2}{4\hbar^2} g(\nu) \qquad (1.9)$$

unde $g(\nu)$ este *funcția de formă a liniei spectrale* naturale.

Studiul funcției $g(\nu)$ pentru linia spectrală lărgită *omogen* (atunci cînd se referă la un singur atom) sau *neomogen* (atunci cînd se referă la colective de atomi cu frecvențe de rezonanță afectate, de exemplu, de efect Doppler) va fi efectuat în § 1.7.3.

1.2. Hamiltonianul de interacție a atomilor cu radiația

Să considerăm o undă electromagnetică plană descrisă de potențialul vector

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}_0 \cos(\mathbf{kr} - \omega t) \qquad (1.10)$$

astfel încît

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \quad \text{și} \quad \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \qquad (1.11)$$

potențialul scalar $V(\mathbf{r}, t)$ fiind presupus nul (ca urmare a absenței sarcinilor și curenților).

Interacția undei cu un electron atomic de masă m și sarcină q, situat într-un potențial central $U(\mathbf{r})$, este descrisă de hamiltonianul

$$H = \frac{1}{2m} [\mathbf{p} - q\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)]^2 + U(\mathbf{r}) - \frac{q}{m} \mathbf{s}\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) \qquad (1.12)$$

$\mathbf{s}$ fiind spinul electronului, iar $\mathbf{p}$ impulsul acestuia. Conform ecuației (1.1) hamiltonianul de interacție $W(t)$ are forma

$$W(t) = -\frac{q}{m} \mathbf{p}\, \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) - \frac{q}{m} \mathbf{s}\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) + \frac{q^2}{2m} \mathbf{A}^2(\mathbf{r}, t). \qquad (1.13)$$

Dacă se neglijează ultimul termen în expresia (1.13) (pentru cîmpuri slabe) se poate scrie

$$W(t) = W'(t) + W''(t) \tag{1.14}$$

unde

$$W'(t) = -\frac{q}{m}\,\mathbf{p}\,\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \tag{1.15}$$

iar

$$W''(t) = -\frac{q}{m}\,\mathbf{s}\,\mathbf{B}(\mathbf{r}, t). \tag{1.16}$$

Inegalitatea $\frac{W''(t)}{W'(t)} \simeq \frac{r_0}{\lambda} \ll 1$, unde r_0 este raza primei orbite a lui Bohr, evidențiază faptul că interacțiile de dipol electric descrise de W' sînt predominante.

O altă formă a energiei de interacție $W(t)$ care pune în evidență termenii $W^{DE}(t)$ $W^{DM}(t)$ și $W^{QE}(t)$ corespunzători interacțiilor de dipol electric, de dipol magnetic respectiv de cvadrupol electric este următoarea

$$W(t) = W^{DE}(t) + W^{DM}(t) + W^{QE}(t), \tag{1.17}$$

calculul efectiv al acestor termeni conform relației (1.13) pentru o perturbație armonică $\mathbf{E}(t) = E_0 e^{i\omega t}\,\mathbf{k}$ determinînd expresiile

$$W^{DE}(t) = \frac{qE_0}{m\omega}\,p_z \sin \omega t \tag{1.18}$$

$$W^{DM}(t) = -\frac{q}{2m}\,(l_x + 2s_x)\,B_0 \cos \omega t \tag{1.19}$$

$$W^{QE}(t) = -\frac{q}{2mc}\,(yp_z + zp_y)\,E_0 \cos \omega t, \tag{1.20}$$

E_0 și B_0 fiind amplitudinile cîmpurilor electric, respectiv magnetic ale undei ($E_0 = B_0 \cdot c$). Din expresiile de mai sus ale perturbațiilor $W^{DM}(t)$ și $W^{QE}(t)$ rezultă că tranzițiile de dipol magnetic și de cvadrupol electric au cam aceași intensitate.

În cazul tranzițiilor de dipol electric (care sînt cam de 10^3 ori mai intense decît cele de dipol magnetic și de cvadrupol electric) se utilizează pentru probabilitatea de tranziție expresia (1.5), unde intervine elementul de matrice al momentului de dipol electric $\mathbf{d}_{mn}(\mathbf{d} = -q\mathbf{r})$ definit de relația

$$\mathbf{d}_{mn} = -\langle\, \psi_m(r)\, \hat{\mathbf{d}}\, \psi_n(r)\, \rangle \tag{1.21}$$

astfel încît

$$W^{DE}_{mn}(t) = -\mathbf{E}(t)\,\mathbf{d}_{mn} \tag{1.22}$$

$\psi_m(r)$ și $\psi_n(r)$ fiind funcții proprii ale hamiltonianului neperturbat.

O altă formă a hamiltonianului sistemului (1.12), în aproximația neglijării spinului și a efectelor relativiste, se obține utilizîndu-se expresia (1.11) a cîmpului electric al undei. Astfel, dacă ne referim la un atom cu

un singur electron (fig. 1.1), în raport cu sistemul de referință considerat se poate scrie

$$H = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + U - \mathbf{d}\mathbf{E}(\mathbf{R}, t) - \mathbf{m}\mathbf{B}(\mathbf{R}, t) + \frac{e}{2}\mathbf{r}\mathbf{r}\,\nabla_R\mathbf{E}(\mathbf{R}, t) + \frac{e^2}{8m}[\mathbf{r} \times \mathbf{B}(\mathbf{R}, t)]^2 \tag{1.23}$$

unde $\mathbf{p} = m\dot{\mathbf{r}}$ este impulsul electronului, $d = -e\mathbf{r}$ momentul de dipol electric, $\mathbf{m} = -\left(\frac{e}{2m}\right)\mathbf{L}$ — momentul de dipol magnetic, $\mathbf{L} = \mathbf{r} \times \mathbf{p}$ — momentul cinetic, $\mathbf{R}$ — vectorul de poziție al nucleului în raport cu originea sistemului de referință, iar $U(\mathbf{r})$ potențialul nucleului în punctul în care se află electronul.

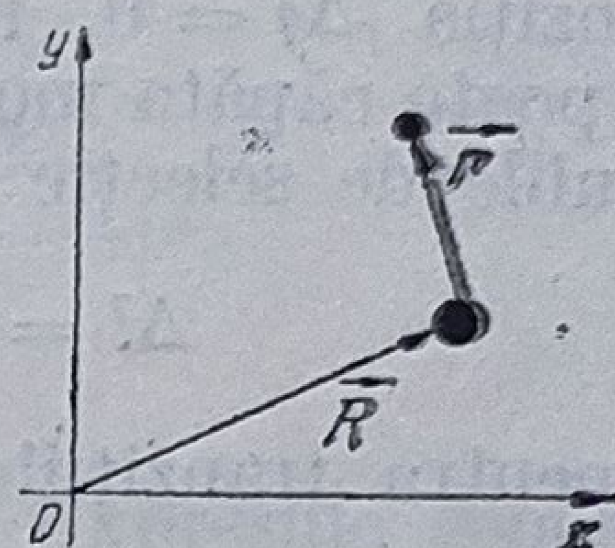


Fig. 1.1

Primii doi termeni în expresia (1.23) reprezintă hamiltonianul sistemului neperturbat, al treilea și al patrulea corespund interacțiilor de dipol electric respectiv magnetic, al cincilea corespunde interacției de cvadrupol electric, iar ultimul termen ia în considerare proprietățile diamagnetice ale atomului.

1.4. Reguli de selecție și polarizarea radiației emise. Stări metastabile

Întrucît calculul elementelor de matrice (1.22) se reduce la calculul elementelor de matrice ale operatorului momentului de dipol electric $\mathbf{d}$ rezultă că sînt permise tranzițiile avînd $\mathbf{d}_{mn} \neq 0$, unde

$$\mathbf{d}_{mn} = d_{mn}^{(x)}\mathbf{i} + d_{mn}^{(y)}\mathbf{j} + d_{mn}^{(z)})\,\mathbf{k}. \tag{1.24}$$

Pentru evaluarea componentelor momentului $\mathbf{d}_{mn}$ se utilizează funcțiile de undă caracteristice mișcării în cîmp central. Se obțin expresiile :

$$d_{mn}^{(x)} \sim \int_0^{2\pi} \{e^{i(m_m - m_n + 1)\varphi} + e^{i(m_n - m_n - 1)\varphi}\}\, d\varphi \tag{1.25}$$

$$d_{mn}^{(y)} \sim -i\int_0^{2\pi} \{e^{i(m_n - m_n + 1)\varphi} - e^{i(m_n - m_n - 1)\varphi}\, d\varphi \tag{1.26}$$

$$d_{mn}^{(z)} \sim \int_0^{2\pi} e^{i(m_n - m_n)\varphi}\, d\varphi \tag{1.27}$$

m_m și m_n fiind numerele cuantice magnetice ale stărilor $|m>$ respectiv $|n>$. Întrucît $d_{mn}^{(x)} \neq 0$ și $d_{mn}^{(y)} \neq 0$ pentru $\Delta m = \pm 1$ și $d_{mn}^{(z)} \neq 0$ pentru

$\Delta m = 0$, rezultă regulile de selecție pentru numărul cuantic magnetic

$$\Delta m = 0, \ \pm 1 \tag{1.28}$$

care implică și $\Delta l = \pm 1$, tranziția $\Delta l = 0$ fiind interzisă. Dacă stările staționare ale electronului sînt specificate de numerele cuantice l, s, j, m_j din calculul elementelor de matrice, rezultă regulile de selecție echivalente

$$\Delta j = 0, \pm 1, \quad \Delta m_j = 0, \pm 1, \quad \Delta l = \pm 1 \tag{1.29}$$

tranziția $\Delta j = 0$, unde $j_m = j_n = 0$, fiind interzisă (fotonul implicat nu poate căpăta moment cinetic de spin). În mod asemănător se stabilesc regulile de selecție pentru tranzițiile de dipol magnetic

$$\Delta l = 0, \quad \Delta m_l = \pm 1, 0\,; \quad \Delta m_s = \pm 1, 0 \tag{1.30}$$

și pentru tranzițiile de cuadrupol electric

$$\Delta l = 0, \pm 2, \quad \Delta m = 0, \pm 1, \pm 2, \tag{1.31}$$

din calculul elementelor de matrice ale lui W^{DM} respectiv W^{QE}.

Pentru $\Delta m = 0$, întrucît $d_{mn}^{(z)} \neq 0$ și $d_{mn}^{(x)} = d_{mn}^{(y)} = 0$, rezultă că radiația este polarizată liniar după direcția z; analog pentru $\Delta m = \pm 1$, $d_{mn}^{(x)} = \pm i d_{mn}^{(y)}$ ($d_{mn}^{(z)} = 0$), deci radiația este polarizată circular dreapta sau stînga, după cum $\Delta m = +1$ sau $\Delta m = -1$.

Regulile de selecție sînt corelate cu proprietățile de simetrie privind paritatea stărilor, fiind o consecință a acestora.

Astfel, tranzițiile de dipol electric nu se pot produce decît între stări de parități opuse, pe cînd tranzițiile de dipol magnetic și de cvadrupol electric se pot produce numai între stări de aceeași paritate (regula lui Laporte). Ca urmare, tranzițiile de dipol electric nu intră în competiție cu cele de dipol magnetic sau de cvadrupol electric. Pe lîngă regulile de selecție discutate mai sus mai pot fi stabilite *reguli de selecție speciale*, cum ar fi cele care se referă la tranzițiile între termeni de aceeași multiplicitate (singlet-singlet, triplet-triplet etc.), tranzițiile de intercombinație (singlet-triplet) fiind interzise.

În cazul în care tranzițiile de dipol electric sînt interzise printr-o anumită regulă de selecție, stările excitate corespunzătoare, avînd un timp de viață lung sînt relativ stabile și se numesc *metastabile*. Astfel de stări avînd probabilități de tranziție de 10^5–10^8 ori mai scăzute în raport cu tranzițiile dipolare, constituie adevărate rezervoare de energie pentru sistemele atomice, cu aplicații în realizarea laserilor. De exemplu, stările heliului $1s2s^3S_1$ și $1s2s^1S_0$ sînt metastabile.

1.5. Teoria lui Einstein asupra emisiei și absorbției radiației

În anul 1917, Einstein a elaborat teoria elementară a interacției radiației cu colectivele de atomi pe baza considerării celor trei tipuri de tranziții care se pot produce între stările $|n>$ și $|m>$ ale unui sistem cuantic cu două nivele, în prezența radiației electromagnetice și anume : absorbție, emisie spontană și emisie stimulată (fig. 1.2).

Fie $\rho_E(\nu)$ densitatea spectrală de energie a unui cîmp de radiație aflat în interacție cu un sistem atomic cu două nivele, alcătuit din $N_0 = N_n + N_m$ atomi, unde N_n și N_m sînt populațiile celor două nivele care, conform distribuției Boltzmann, satisfac relația

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{g_2}{g_1} e^{-\frac{h\nu}{kT}}, \tag{1.32}$$

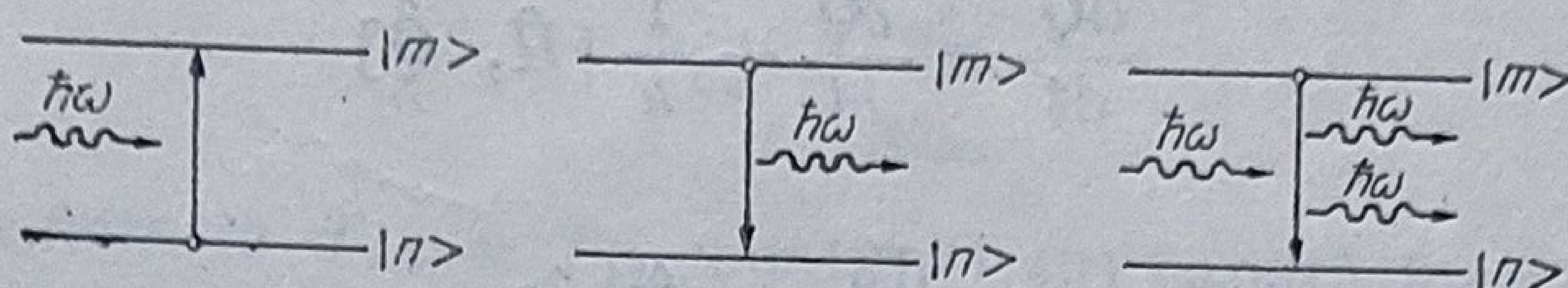


Fig. 2

iar g_1 și g_2 sînt degenerescențele nivelelor implicate. Expresiile generale ale probabilităților de emisie spontană, emisie stimulată și absorbție au forma

$$(P_{mn})_{sp} = A_{mn} \tag{1.33}$$

$$(P_{mn})_{st} = B_{mn}\,\rho_E(\nu) \tag{1.34}$$

$$(P_{nm})_{ab} = C_{nm}\,\rho_E(\nu) \tag{1.35}$$

unde A_{mn}, B_{mn} și C_{nm} sînt coeficienții lui Einstein de *emisie spontană*, *emisie stimulată*, respectiv, *absorbție*.

Dacă se consideră că $\rho_E(\nu)$ este dată de legea lui Planck a radiației termice

$$\rho_E(\nu) = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3}\,\frac{1}{e^{\frac{h\nu}{kT}} - 1}, \tag{1.36}$$

ecuația de bilanț între procesele de emisie și absorbție pentru regimul staționar are forma

$$(B_{mn}\,\rho_E(\nu) + A_{mn})\,N_m = C_{nm}\,\rho_E(\nu)\,N_n, \tag{1.37}$$

astfel încît ținînd seama de (1.32) rezultă pentru $T \to \infty$ condiția

$$C_{nm} = B_{mn}, \tag{1.38}$$

adică egalitatea coeficienților lui Einstein de emisie stimulată și absorbție. Totodată se obține relația de legătură dintre coeficienții A_{mn} și B_{mn}

$$\frac{A_{mn}}{B_{mn}} = \frac{8\pi\,h\nu^3}{c^3}. \tag{1.39}$$

Expresiile intensităților radiațiilor emise spontan, stimulat sau absorbită au forma

$$I_{sp} = N_m A_{mn} h\nu_{mn} \tag{1.40}$$

$$I_{st} = N_m B_{mn}\,\rho_E(\nu)\,h\nu_{mn} \tag{1.41}$$

$$I_{ab} = N_n B_{nm}\,\rho_E(\nu)\,h\nu_{mn}, \tag{1.42}$$

fiind utile pentru studiul condițiilor de amplificare a radiației în laseri.

1.6. Ecuațiile de mișcare pentru tranzițiile de dipol electric

1.6.1. Ecuațiile generale de mișcare pentru operatori

Ecuațiile de mișcare pentru operatorii cuantici $\hat{Q}$ și pentru operatorii densitate au forma

$$\frac{d\hat{Q}}{dt} = \frac{\partial\hat{Q}}{\partial t} + \frac{i}{\hbar}[\hat{H}, \hat{Q}] \tag{1.43}$$

respectiv

$$i\hbar\frac{d\hat{\rho}}{dt} = [\hat{H}, \hat{\rho}] \tag{1.44}$$

valoarea medie a operatorului $\hat{Q}$ fiind dată de relația

$$\langle\hat{Q}\rangle = \mathrm{Urm}\,[\hat{\rho}, \hat{Q}]. \tag{1.45}$$

Pe baza ecuației (1.44) se poate scrie ecuația de mișcare pentru elementele de matrice ale operatorului densitate în cazul prezenței unei perturbații a mediului atomic

$$i\hbar\frac{\partial\rho_{mn}}{\partial t} = (E_m - E_n)\,\rho_{mn} + [\hat{W}, \hat{\rho}]_{mn}. \tag{1.46}$$

Dacă se ține seama în expresia perturbației $W(t)$ și de interacțiile interne $W_i(t)$ (dintre atomi și rețea, ciocnirile dintre molecule etc.), astfel încît $W(t) = W_i(t) + W_e(t)$, în ecuația (1.46) intervin termeni de relaxare corespunzători proceselor de interacție internă, care determină modificări ale elementelor de matrice ρ_{mn} și în absența perturbației exterioare. În consecință se poate scrie

$$i\hbar\frac{\partial\rho_{mn}}{\partial t} = (E_m - E_n)\,\rho_{mn} + [\hat{W}_e, \hat{\rho}]_{mn} + [\hat{W}_i, \hat{\rho}]_{mn}. \tag{1.47}$$

Dacă la $t = 0$ sistemul se află în starea $|u_i\rangle$, conform aproximației Wigner-Weisskopf [79], elementele ρ_{mm} încep să scadă exponențial în timp în absența perturbației exterioare, astfel încît ultimul termen în ecuația (1.47) este un termen de relaxare.

În ceea ce privește elementele nediagonale ale lui $\hat{\rho}$, întrucît la echilibru termic $\rho_{mn} = 0$ pentru $m \neq n$, $W_i(t)$ va modifica elementele de matrice ρ_{mn} conform ecuației

$$i\hbar\frac{\partial\rho_{mn}}{\partial t} = \hbar\omega_{mn}\,\rho_{mn} + [\hat{W}_e, \hat{\rho}]_{mn} - \frac{i\hbar}{\tau_{mn}}\rho_{mn} \tag{1.48}$$

unde $\tau_{mn} = \tau_{nm}$, $\hat{\rho}$ fiind hermitic. Constanta τ_{mn} se notează, în continuare, cu T_2 și se numește *timp de relaxare transversal* sau timp de relaxare *spin–spin*. Se va arăta [12] că această constantă este corelată cu lărgimea de bandă a tranziției și constituie astfel o măsură a timpului de coerență.

În același timp, se constată că elementele diagonale ale lui $\hat{\rho}$ satisfac ecuația

$$i\hbar\frac{\partial\rho_{mm}}{\partial t} = [\hat{W}_e, \hat{\rho}]_{mm} + i\hbar\sum_n(\rho_{nn}w_{nm} - \rho_{mm}w_{mn}) \tag{1.49}$$

unde termenii de formă $-\rho_{mm}w_{mn}$ și $\rho_{nn}\,w_{nm}$ reprezintă ratele de tranziție care determină scăderea respectiv creșterea probabilității de ocupare a stării $|m\rangle$, încît la echilibru

$$\rho^e_{mm}w_{mn} = \rho^e_{nn}w_{nm}. \tag{1.50}$$

Dacă definim constantele de timp

$$T_{mn} = \frac{\rho^e_{nn}}{w_{mn}} \tag{1.51}$$

și intoducem notația $T_{mn} = T_1$, ecuația (1.49) capătă forma

$$i\hbar\frac{\partial\rho_{mm}}{\partial t} = [W_e, \rho]_{mm} + \frac{i\hbar}{T_1}(\rho^e_{mm} - \rho_{mm}). \tag{1.52}$$

Întrucît pentru $W_e = 0$, sistemul se relaxează cu constanta de timp T_1, aceasta va fi numită *timp de relaxare longitudinal* sau *spin—rețea*. Principalele procese care determină constanta de timp T_1 sînt emisia spontană, interacția cu rețeaua și ciocnirile inelastice; T_2 fiind cauzată în plus de ciocnirile elastice, rezultă că în general $T_2 \leqslant T_1$. (Constantele de relaxare T_1 și T_2 intervin în mod analog și pentru caracterizarea interacțiilor sistemelor cu spin (vezi § 1.8), de unde și denumirile menționate mai sus).

Dacă se evaluează derivata valorii medii a unui operator $\hat{Q}$, care nu depinde explicit de timp, ținîndu-se seama de ecuațiile (1.1), (1.45), (1.48) și (1.52) se obține

$$\langle\dot{\hat{Q}}\rangle + \frac{\langle\hat{Q}\rangle}{T_2} - \frac{\langle\hat{Q}\rangle^e}{T_1} = \frac{1}{i\hbar}\langle[\hat{Q}, \hat{H}]\rangle + \left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1}\right)\sum_n \rho_{nn}Q_{nn}. \tag{1.53}$$

Această ecuație prezintă un interes particular în cazurile în care: a) toate elementele diagonale ale lui $\hat{Q}$ sînt nule; b) numai elementele diagonale ale lui $\hat{Q}$ sînt nenule, după cum se va arăta în paragrafele următoare.

1.6.2. Ecuația de polarizare

Fie un sistem atomic sau molecular, caracterizat de stările proprii $|n_1\rangle$ și $|n_2\rangle$ avînd parități opuse, astfel că sînt posibile tranziții de dipol electric între aceste stări.

Partea de interacție a hamiltonianului care determină tranzițiile de dipol electric are expresia (1.22)

$$W^{DE} = -\mathbf{dE} = -\sum_{i=1}^{3} d_i E_i. \tag{1.54}$$

Ținîndu-se seama de forma nediagonală a matricei asociate operatorului dipol electric

$$d_i = \begin{bmatrix} 0 & d_i \\ d_i^* & 0 \end{bmatrix}, \tag{1.55}$$

determinată de paritățile opuse ale funcțiilor proprii nedegenerate ale sistemului cu două nivele considerat, hamiltonianul de interacție W^{DE} se scrie sub forma

$$W^{DE} = \begin{bmatrix} 0 & -\sum d_i E_i \\ -\sum d_i^* E_i & 0 \end{bmatrix}. \tag{1.56}$$

De un deosebit interes în cele ce urmează este, în cazul tranzițiilor de dipol, observabila momentului de dipol electric, a cărui valoare medie se poate scrie sub forma

$$\langle \hat{d}_i \rangle = \text{Urm}\,[\hat{\rho}\ \hat{d}_i]. \tag{1.57}$$

Dacă numărul de atomi sau molecule pe unitatea de volum a mediului este

$$N = \frac{N_0}{V} \tag{1.58}$$

polarizarea macroscopică a mediului se obține însumînd contribuțiile fiecărui dipol atomic sau molecular și mediind peste toate moleculele, astfel încît se poate scrie

$$P_i = \frac{1}{V} \sum_{k=1}^{N_0} \langle d_i \rangle^k = N\,\langle \tilde{d}_i \rangle. \tag{1.59}$$

Medierea peste toate moleculele, specificată prin linia ondulată, este necesară deoarece orientările moleculelor sînt diferite.

Ecuația de mișcare pentru polarizarea macroscopică se va obține dacă se stabilește în prealabil ecuația de mișcare pentru operatorul moment de dipol electric. Întrucît, conform ecuației (1.55), toate elementele diagonale ale matricei asociate acestui operator sînt nule, ecuația derivatei temporale a valorii medii a operatorului $\hat{d}$ se obține, ținîndu-se seama de ecuația (1.53) sub forma

$$\langle \dot{\hat{d}}_i \rangle + \frac{\langle \hat{d}_i \rangle}{T_2} = \frac{1}{i\hbar} \langle [\hat{d}_i, \hat{H}] \rangle \tag{1.60}$$

unde $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{W}$.

Ecuația de mișcare pentru observabila moment electric de dipol se obține considerînd derivata a doua în raport cu timpul a ecuației (1.60)

$$\langle \ddot{\hat{d}}_i \rangle + \frac{\langle \dot{\hat{d}}_i \rangle}{T_2} = \frac{1}{i\hbar} \langle [\dot{\hat{d}}_i\, H] \rangle \tag{1.61}$$

și înlocuind în membrul drept pe $\langle \dot{\hat{d}}_i \rangle$ conform ecuației (1.53). Rezultă

$$\langle \ddot{\hat{d}}_i \rangle + \frac{2}{T_2} \langle \dot{\hat{d}}_i \rangle + \frac{1}{T_2^2} \langle \hat{d}_i \rangle = -\frac{1}{\hbar^2} \langle [[\hat{d}_i, \hat{H}], \hat{H}] \rangle +$$

$$+ \frac{1}{i\hbar} \left[\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1} \right] \sum_i \rho_{ii} [\hat{d}_i, \hat{W}]_{ii} \tag{1.62}$$

însă pentru cazurile de interes $[\hat{d}_i, \hat{W}] = 0$.

Întrucît comutatorul interior din membrul drept are expresia

$$[\hat{d}_i, \hat{H}] = [\hat{d}_i, \hat{H}_0] = \hbar\Omega \begin{bmatrix} 0 & d_i \\ -d_i^* & 0 \end{bmatrix} \quad (1.63)$$

unde $\Omega = \frac{E_2 - E_1}{\hbar}$ este frecvenţa de tranziţie şi introducîndu-se matricea diagonală

$$D = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \quad (1.64)$$

astfel încît

$$\langle \hat{D} \rangle = \text{Urm}\,[\hat{\rho}, \hat{D}] = \rho_{11} - \rho_{22} \quad (1.65)$$

reprezintă diferenţa probabilităţilor de ocupare a stărilor proprii cu energiile E_1 şi E_2, se obţine

$$[[\hat{d}_i, \hat{H}], \hat{H}] = \hbar^2\Omega^2 d_i - 2\hbar\Omega\, d_i d_j^* E_j D. \quad (1.66)$$

Ca urmare, ecuaţia de mişcare (1.62) pentru operatorul $\hat{d}$ capătă forma

$$\langle \ddot{\hat{d}}_i \rangle + \frac{2}{T_2} \langle \dot{\hat{d}}_i \rangle + \Omega^2 \langle \hat{d}_i \rangle = \frac{2\Omega}{\hbar} (d_i d_j^*) (\rho_{11} - \rho_{22}) E_j^{loc}. \quad (1.67)$$

În scrierea ecuaţiei (1.67) s-a neglijat termenul $\frac{\langle \hat{d}_i \rangle}{T_2^2}$ datorită condiţiei $\Omega^2 \gg \frac{1}{T_2^2}$; de asemenea prin E_j^{loc} (sau E_j') se înţelege cîmpul local văzut de o moleculă, care este diferit de cîmpul macroscopic, datorită polarizării locale a substanţei.

Ecuaţia de mişcare pentru observabila „polarizare" se obţine însumînd şi mediind ecuaţia (1.67) peste toate orientările posibile şi pentru toate moleculele din unitatea de volum conform relaţiei (1.59). Rezultă

$$\ddot{\mathbf{P}}_i + \frac{2}{T_2} \dot{\mathbf{P}}_i + \Omega^2 \mathbf{P}_i = \frac{2\Omega}{\hbar} (\widetilde{d_i d_j^*}) (N_1 - N_2)\, \mathbf{E}_j^{loc}. \quad (1.68)$$

Aici s-a notat cu $N_1 - N_2$ diferenţa de populaţie pe unitatea de volum

$$N_1 - N_2 = N(\rho_{11} - \rho_{22}) \quad (1.69)$$

considerîndu-se că diferenţa $\rho_{11} - \rho_{22}$ este aproximativ constantă pentru toate moleculele, indiferent de orientare, iar media orientaţională a produsului este egală cu produsul mediilor.

Pe de altă parte, într-un gaz izotrop format din molecule anizotrope, cum este mediul considerat în cazul de faţă, $(\widetilde{d_i d_j^*}) = 0$ pentru $i \neq j$, deoarece momentul electric de dipol indus trebuie să fie orientat în direcţia cîmpului aplicat astfel că ţinînd seama de echivalenţa direcţiilor x, y şi z se poate scrie

$$|\mathbf{d}_{12}|^2 = |\tilde{d}_x|^2 + |\tilde{d}_y|^2 + |\tilde{d}_z|^2 = 3|\tilde{d}_x|^2. \quad (1.70)$$

Ca urmare, ecuaţia (1.68) a observabilei polarizare în medii cuantificate are forma

$$\ddot{\mathbf{P}} + \frac{2}{T_2}\dot{\mathbf{P}} + \Omega^2\mathbf{P} = \frac{2\Omega}{\hbar}\frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3}(N_1 - N_2)\,\mathbf{E}'. \tag{1.71}$$

Se observă că polarizarea mediului acţionează ca un oscilator armonic avînd frecvenţa Ω, care, în lipsa cîmpului, se relaxează cu constanta de timp T_2, ca urmare a *defazării interne a dipolilor individuali* prin interacţie mutuală. Acestui oscilator i se furnizează energie prin intermediul cîmpului electric.

Coeficientul de cuplaj dintre cîmp şi polarizare este proporţional cu diferenţa de populaţie $(N_1 - N_2)$, astfel că atunci cînd $N_1 - N_2 \to 0$, cuplajul dintre cîmp şi polarizare dispare, obţinîndu-se „transparenţa" substanţei în raport cu cîmpul, caracteristică fenomenelor de saturaţie.

1.6.3. Ecuaţia de populaţii

Prin relaţia (1.69) s-a *definit diferenţa de populaţie pe unitatea de volum*, care constituie o altă observabilă de importanţă deosebită în studiul interacţiei cîmp—substanţă.

Într-adevăr, diferenţa de populaţie determină atît tăria cuplajului cîmp-polarizare după cum s-a arătat anterior cît şi cantitatea de energie înmagazinată în mediul cuantificat. Ecuaţia de mişcare pentru diferenţa de populaţie se obţine scriind ecuaţia (1.53) pentru operatorul $\hat{D}$ avînd matricea diagonală (1.64), sub forma

$$\langle\dot{\hat{D}}\rangle + \frac{\langle\hat{D}\rangle - \langle\hat{D}\rangle^e}{T_1} = \frac{1}{i\hbar}\langle[\hat{D}, \hat{H}\rangle \tag{1.72}$$

sau echivalent

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_{11} - \rho_{22}) + \frac{(\rho_{11} - \rho_{22}) - (\rho_{11} - \rho_{22})^e}{T_1} = \frac{1}{i\hbar}\langle[\hat{D}, \hat{H}]\rangle. \tag{1.73}$$

Întrucît

$$[\hat{D}, \hat{H}] = [\hat{D}, \hat{W}] = -2E_i\begin{bmatrix} 0 & d_i \\ -d_i^* & 0 \end{bmatrix} \tag{1.74}$$

ţinîndu-se seama de (1.63) se poate scrie

$$[\hat{D}, \hat{H}] = -\frac{2E_i[\hat{d}_i, \hat{H}]}{\hbar\Omega}. \tag{1.75}$$

Pe de altă parte, din ecuaţia (1.60), cu condiţia $\Omega T_2 \gg 1$, se obţine

$$\langle\dot{\hat{P}}_i\rangle = \frac{1}{i\hbar}\langle[\hat{P}_i, \hat{H}]\rangle \tag{1.76}$$

astfel încît ţinîndu-se seama de (1.69) ecuaţia (1.73) devine

$$\frac{\partial}{\partial t}(N_1 - N_2) + \frac{(N_1 - N_2) - (N_1 - N_2)^e}{T_1} = -\frac{2}{\hbar\Omega}\dot{P}_iE_i'. \tag{1.77}$$

Ecuaţia (1.77) este fundamentală pentru diferenţa de populaţie în mediile cuantificate. Se observă că modificările în energia înmagazinată pe unitatea de volum

$$\rho_E = -\frac{\partial}{\partial t}\left[\frac{\hbar\Omega}{2}(N_1 - N_2)\right] \tag{1.78}$$

sînt determinate de termenul $\dot{\mathbf{P}}\mathbf{E}$ care reprezintă energia cedată de cîmp mediului ce se polarizează.

În absenţa cîmpului, diferenţa de populaţie tinde către o valoare de echilibru cu constanta de timp T_1 de relaxare longitudinală, energia fiind cedată termostatului atomic.

1.6.4. Ecuaţiile de cîmp

Ecuaţiile de cîmp pentru un mediu polarizabil, izotrop, neîncărcat, se obţin utilizîndu-se ecuaţiile lui Maxwell în care se ţine seama că polarizarea totală $\mathbf{P}^{tot}$ a mediului este determinată atît de polarizarea $\mathbf{P}'$ corelată cu tranziţia care interesează numită *sursă*, cît şi de alte tranziţii care au loc în mediu astfel încît se poate scrie

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0\mathbf{E} + \mathbf{P}^{tot} = \varepsilon\mathbf{E} + \mathbf{P}' \tag{1.79}$$

unde efectul altor tranziţii este luat în considerare prin înlocuirea $\varepsilon_0 \to \varepsilon$. Înlocuind expresia (1.79) a inducţiei în ecuaţiile lui Maxwell se obţine următoarea ecuaţie diferenţială de propagare

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \frac{n}{c}\gamma\frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{n^2}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0\frac{\partial^2 \mathbf{P}'}{\partial t^2} \tag{1.80}$$

unde n este indicele de refracţie relativ al mediului, iar $\gamma = \mu_\rho \sigma c/n$ un coeficient de atenuare. Un astfel de cîmp electromagnetic progresiv este descris cu ajutorul modelului undelor plane conform descompunerii

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_\alpha \frac{\mathbf{E}_0^\alpha}{2} e^{i(\omega_\alpha t - \mathbf{k}_\alpha \mathbf{r})} + \text{c.c.} \tag{1.81}$$

α fiind un indice de însumare.

În cazul laserilor, însă, prezintă un interes deosebit cîmpul electromagnetic închis într-o cavitate rezonantă, astfel că pentru descrierea acestuia se utilizează modelul *modurilor normale Slater de oscilaţie ale cavităţii*.

Fie o cavitate cu pereţii perfect conducători, în interiorul cavităţii fiind situat un mediu dielectric avînd permitivitatea ε. Ţinîndu-se seama de condiţiile la limită ($E_t = 0$ şi $B_n = 0$ pe suprafaţă), cîmpul din cavitate admite dezvoltările

$$\mathbf{E} = -\frac{1}{\sqrt{\varepsilon}}\sum_c p_c(t)\,\mathbf{E}_c(\mathbf{r}) \tag{1.82}$$

respectiv

$$\mathbf{H} = \frac{1}{\sqrt{\mu}}\sum_c \omega_c q_c(t)\,\mathbf{H}_c(\mathbf{r}) \tag{1.83}$$

unde $\mathbf{E}_c(\mathbf{r})$ și $\mathbf{H}_c(\mathbf{r})$ specifică modurile normale de oscilație, dependența de timp a cîmpului fiind exprimată de coeficienții $p_c(t)$ și $q_c(t)$. Ecuația (1.80) în care s-au introdus dezvoltările (1.82) și (1.83) și s-a ținut seama că modurile de oscilație nu sînt ortonormate, se transformă astfel

$$\ddot{p}_c + \frac{\gamma c}{n}\dot{p}_c + \omega_c^2 p_c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon}}\int \ddot{\mathbf{P}}'\mathbf{E}_c(\mathbf{r})\,\mathrm{d}V. \tag{1.84}$$

Dacă se introduce timpul de viață în cavitate al radiației $\tau_c = \frac{n}{\gamma c}$ și se consideră important un singur mod de oscilație al cîmpului, ecuația (1.84) devine

$$\ddot{\mathbf{E}} + \frac{1}{\tau_c}\dot{\mathbf{E}} + \omega_c{}^2\mathbf{E} = -\frac{1}{\varepsilon}\mathbf{E}_c(\mathbf{r})\int \ddot{\mathbf{P}}'\mathbf{E}_c(\mathbf{r})\,\mathrm{d}V \tag{1.85}$$

sau pentru o distribuție a polarizării analogă cîmpului

$$\ddot{\mathbf{E}} + \frac{1}{\tau_c}\dot{\mathbf{E}} + \omega_c^2\mathbf{E} = -\frac{1}{\varepsilon}\ddot{\mathbf{P}}' \tag{1.86}$$

(la studiul rezonatorilor optici se va arăta că în general τ_c este determinat atît de pierderile de radiație prin oglinzile rezonatorului (τ_m) cît și de pierderile prin împrăștiere și absorbție (τ_s) la care se adaugă pierderile prin difracție (τ_d) astfel încît $1/\tau_c = 1/\tau_m + 1/\tau_s + 1/\tau_d$).

În ecuațiile (1.71), (1.77), (1.80) și (1.86) trebuie să se țină seama că intervine cîmpul local $\mathbf{E}'$ și polarizarea sursă $\mathbf{P}'$ astfel că se impune stabilirea unor relații directe între mărimile microscopice și mărimile macroscopice corespunzătoare. Se poate arăta [12] că

$$\mathbf{P}' = \frac{n^2+2}{3}\mathbf{P} = \sqrt{L}\,\mathbf{P} \tag{1.87}$$

$$\mathbf{E}' = \frac{n^2+2}{3}\mathbf{E} = \sqrt{L}\,\mathbf{E}; \tag{1.88}$$

L se numește *factorul de corecție Lorentz*. (Expresia $L = \left(\frac{n^2+2}{3}\right)^2$ a fost stabilită utilizîndu-se relația cunoscută $\mathbf{E}' = \mathbf{E} + \frac{1}{3\varepsilon_0}\mathbf{P}^{tot}$, unde $\mathbf{E}$ este cîmpul macroscopic).

Dacă se introduce factorul de corecție Lorentz în ecuațiile pentru polarizare, populație și cîmp se obține următorul sistem de ecuații de mișcare pentru tranzițiile de dipol electric

$$\ddot{\mathbf{P}} + \frac{2}{T_2} + \Omega^2\mathbf{P} + \frac{2\Omega}{\hbar}L\frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3}(N_1 - N_2)\,\mathbf{E} \tag{1.89}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(N_1 - N_2) + \frac{(N_1 - N_2) - (N_1 - N_2)^e}{T_1} = -\frac{2}{\hbar\Omega}\dot{\mathbf{P}}\mathbf{E} \tag{1.90}$$

$$\nabla\times(\nabla\times\mathbf{E}) + \frac{n\gamma}{c}\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t} + \frac{n^2}{c^2}\frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0\frac{\partial^2\mathbf{P}}{\partial t^2} \tag{1.91}$$

$$\ddot{\mathbf{E}} + \frac{1}{\tau_c}\dot{\mathbf{E}} + \omega_c{}^2\mathbf{E} = -\frac{1}{\varepsilon}\mathbf{E}_c(\mathbf{r})\int \ddot{\mathbf{P}}\mathbf{E}_c(\mathbf{r})\,\mathrm{d}V. \tag{1.92}$$

unde s-a notat $\mathbf{P}'$ cu $\mathbf{P}$ pentru simplificarea scrierii.

1.7. Fenomenele de absorbţie rezonantă, dispersie şi saturaţie

1.7.1. Proprietăţile de absorbţie rezonantă şi dispersie ale mediului

Studiul proprietăţilor de absorbţie şi dispersie ale mediului se poate face ţinîndu-se seama de forma foarte variată a relaţiei $\mathbf{D} = \mathbf{D}(\mathbf{E})$ în diferite medii, pe baza căreia se defineşte susceptibilitatea complexă a acestor medii conform dezvoltării

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0(1 + \overline{\overline{\chi}})\,\mathbf{E} + \varepsilon_0(\overline{\overline{\overline{\chi}}}\,\mathbf{E}\,\mathbf{E} + \overline{\overline{\overline{\overline{\chi}}}}\,\mathbf{E}\,\mathbf{E}\,\mathbf{E} + \ldots) = \varepsilon\mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL} \qquad (1.93)$$

în care cu $\mathbf{P}_{NL}$ s-a notat partea neliniară a polarizării.

Dacă într-o primă aproximaţie se neglijează polarizarea neliniară, susceptibilitatea liniară va fi definită de relaţia

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0\chi(\omega)\,\mathbf{E} \qquad (1.94)$$

în care $\chi(\omega)$ este o mărime complexă

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) + i\chi''(\omega), \qquad (1.95)$$

$\chi'(\omega)$ caracterizînd proprietăţile de dispersie ale mediului iar $\chi''(\omega)$ proprietăţile de absorbţie ale acestuia. Dependenţa explicită de frecvenţă a susceptibilităţii se poate obţine prin compararea relaţiei (1.94) cu soluţia $\mathbf{P}(\mathbf{E})$ a ecuaţiei (1.89) care rezultă admiţînd pentru polarizare şi intensitatea cîmpului electric la frecvenţe optice expresii de forma

$$\mathbf{P} = \frac{1}{2}\mathbf{P}_0\,e^{i(\omega t - kz)} + \text{c.c.} \qquad (1.96)$$

respectiv

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2}\,\mathbf{E}_0\,e^{i(\omega t - kz)} + \text{c.c.} \qquad (1.97)$$

unde $\omega \simeq \Omega$.

Pentru regim staţionar $\frac{\partial}{\partial t}(N_1 - N_2) = 0$ întrucît $\omega T_1 \gg 1$ astfel încît

$$\mathbf{P}_0 = \frac{L}{\hbar}\,\frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3}(N_1 - N_2)\,\frac{1}{(\Omega - \omega) + i\left(\frac{1}{T_2}\right)}\,\mathbf{E}_0. \qquad (1.98)$$

Prin urmare

$$\chi(\omega) = \frac{\pi}{\hbar\,\varepsilon_0}\,L\,\frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3}\,(N_1 - N_2)\,g_L^c\,(\omega, \Omega) \qquad (1.99)$$

unde mărimea $g_L^c\,(\omega, \Omega)$ este dată de expresia

$$g_L^c(\omega, \Omega) = \frac{1}{\pi}\,\frac{1}{(\Omega - \omega) + i(1/T_2)} \qquad (1.100)$$

numită *funcţie complexă de formă a liniei spectrale a lui Lorentz.*

Dacă în locul ecuației (1.89) pentru mediile izotrope se utilizează ecuația (1.68) valabilă în mediile anizotrope, susceptibilitatea electrică va fi un tensor care corelează o anumită componentă a polarizării cu componentele cîmpului electric după direcții diferite :

$$\mathbf{P}_{0i} = \frac{\pi}{\hbar}(\widetilde{d_i d_j^*})(N_1 - N_2)\, g_L^c(\omega, \Omega)\, \mathbf{E}_{0j} = \varepsilon_0 \chi_{ij}(\omega)\, \mathbf{E}_{0j} \qquad (1.101)$$

unde χ_{ij} sînt componentele unui tensor de ordinul al doilea.

În cele ce urmează se vor analiza proprietățile de absorbție și dispersie ale mediilor izotrope, în apropierea frecvenței de rezonanță Ω. Astfel din expresiile (1.95) și (1.99) ținîndu-se seama de (1.100) rezultă

$$\chi'(\omega) = \frac{\pi}{\hbar\,\varepsilon_0} \mathrm{L} \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3}(N_1 - N_2)\left[\frac{1}{\pi}\frac{(\Omega - \omega)}{(\Omega - \omega)^2 + (1/T_2)^2}\right] \qquad (1.102)$$

respectiv

$$\chi''(\omega) = -\frac{\pi}{\hbar\,\varepsilon_0} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3}(N_1 - N_2)\left[\frac{1}{\pi}\frac{1/T_2}{(\Omega - \omega)^2 + (1/T_2)^2}\right]. \qquad (1.103)$$

Pentru a se găsi dependența dintre $\chi(\omega)$ și constanta de propagare complexă $k(\omega)$ care intervine în soluțiile de forma (1.96) și (1.97) se utilizează ecuația de cîmp (1.91) în care se introduc aceste soluții. Se obține

$$k^2(\omega) = \frac{n^2\omega^2}{c^2}\left[1 + \frac{\chi(\omega)}{n^2}\right] \qquad (1.104)$$

În ipoteza

$$\chi(\omega) \ll \frac{1}{n^2} \qquad (1.105)$$

acceptabilă din punct de vedere fizic și ținînd seama de dezvoltare

$$\sqrt{1 + \chi/n^2} \simeq 1 + \chi/2n^2 \qquad (1.106)$$

se obține

$$k = k' + \mathrm{i}k'' \simeq \frac{n\omega}{c}\left[1 + \frac{\chi(\omega)}{2n^2}\right] + \mathrm{i}\,\frac{\omega\chi''(\omega)}{2\,nc}, \qquad (1.107)$$

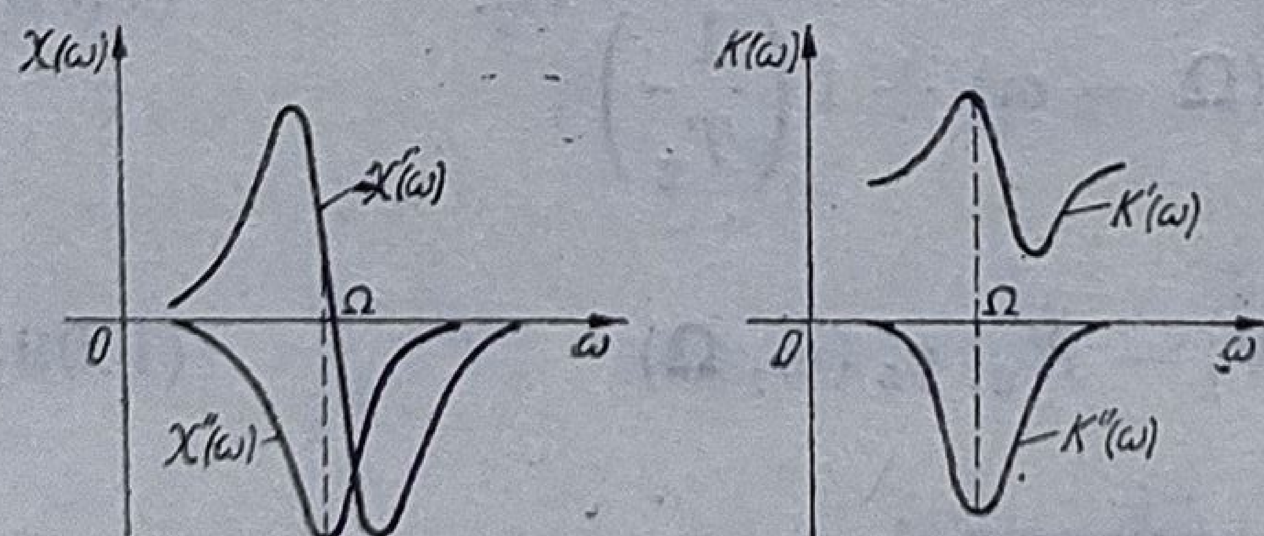


Fig. 1.3

În figurile 1.3a și b se reprezintă grafic, calitativ, dependența de frecvență a mărimilor χ respectiv k, în jurul frecvenței de tranziție, folosindu-se expresiile (1.102) și (1.103) ale lui $\chi'(\omega)$ și $\chi''(\omega)$.

Constanta de propagare $k'(\omega)$ ia în considerare proprietățile de dispersie ale mediului, aceste proprietăți fiind determinate de $\chi'(\omega)$ care se comportă la fel cu $k'(\omega)$ în jurul frecvenței de rezonanță.

Dependența lui $\chi'(\omega)$ de frecvență evidențiază fenomenul de dispersie anormală, caracteristic acestor medii în jurul frecvenței de tranziție Ω.

Proprietăţile de absorbţie ale mediului sînt determinat de $k''(\omega)$, a cărei dependenţă de frecvenţă este dată de $\chi''(\omega)$.

Definind coeficientul de atenuare Γ pentru intensitatea undei care se propagă în medie cu ajutorul legii

$$I = I_0 \exp \left[-\Gamma z \right], \tag{1.108}$$

relaţia de definiţie a intensităţii fiind

$$I = \frac{nc\varepsilon_0}{2} |\mathbf{E}_0 \exp \left[-ikz \right]|^2, \tag{1.109}$$

din compararea expresiilor de mai sus se obţine direct dependenţa de frecvenţă a coeficientului Γ:

$$\Gamma = -2k'' = \frac{\Omega\pi}{\varepsilon_0 \hbar \, cn} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|}{3} (N_1 - N_2) \, g_L(\omega, \ \Omega). \tag{1.110}$$

În expresia (1.110) a lui Γ, $g_L(\omega, \Omega)$ reprezintă *partea imaginară a funcţiei complexe Lorentz* $g_L^c(\omega, \Omega)$ avînd expresia:

$$g_L(\omega, \Omega) = \frac{1}{\pi} \frac{1/T_2}{(\Omega - \omega)^2 + (1/T_2)^2}. \tag{1.111}$$

Deoarece prin intermediul lui Γ, funcţia $g_L(\omega, \Omega)$ determină forma liniei de absorbţie a radiaţiei de către mediu, ea poartă numele de *funcţia de formă a liniei spectrale Lorentz*. Dependenţa de frecvenţă a funcţiei $g_L(\omega, \Omega)$ este prezentată grafic în figura 1.4.

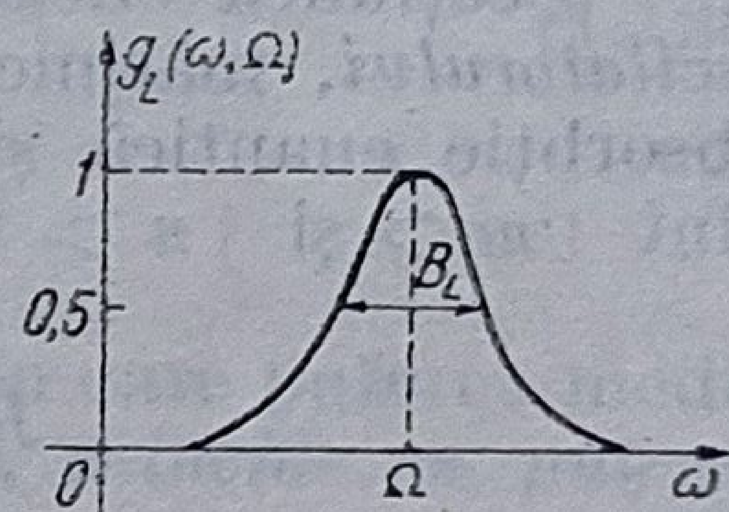


Fig.1. 4

Funcţia de formă a liniei spectrale Lorentz intervine în studiul tuturor fenomenelor de absorbţie şi rezonanţă optică. Se poate verifica că $g_L(\omega, \Omega)$ dat de relaţia (1.111) satisface condiţia de normare

$$\int g_L(\omega, \Omega) \, d\omega = 1. \tag{1.112}$$

Cu ajutorul acesteia se poate determina lărgimea de bandă a liniei spectrale „lorentziene”, definită prin expresia

$$B = 2\Delta\omega_L \tag{1.113}$$

unde $\Delta\omega_L$ rezultă din condiţia

$$[g_L(\omega, \ \Omega)]_{\Delta\omega_L} = \frac{1}{2} [g_L(\omega, \ \Omega)]_{max}, \tag{1.114}$$

adică B reprezintă ecartul de frecvenţă între punctele situate simetric în raport cu frecvenţa centrală Ω, pe curba $g_L(\omega, \Omega)$, pentru care valoarea lui $g_L(\omega, \Omega)$ se reduce la jumătate din valoarea sa maximă. Rezultă

$$\Delta\omega_L = \frac{1}{T_2}, \tag{1.115}$$

T_2 fiind timpul de relaxare spin-spin caracteristic mediului.

Din expresia lui Γ rezultă dependența liniară a coeficientului de absorbție de diferența de populație ($N_1 - N_2$). *Se observă că N_2 are o contribuție negativă la coeficientul de absorbție*, favorizînd transferul de energie de la mediu către cîmpul electromagnetic, deci procesele de emisie. *Pentru $N_2 > N_1$ absorbția mediului devine negativă astfel că are loc amplificarea radiației, fenomen caracteristic funcționarii laserilor și maserilor.*

Alte modalități prin care pot fi descrise proprietățile de absorbție ale mediului, sau *tăria tranzițiilor* între stările atomice implicate, sînt determinate de utilizarea unor mărimi ca *secțiunea eficace de absorbție per atom*, respectiv, *tăria oscilatorului*. Secțiunea eficace de absorbție peratom σ_e, se definește pentru un mediu atomic cu două stări, avînd $N_1 = N$ și $N_2 = 0$, prin raportul *dintre puterea absorbită per atom către puterea incidentă pe unitatea de arie*

$$\sigma_e = \frac{P}{NI} = -\frac{1}{NI}\frac{dI}{dz} = \frac{\Gamma}{N} \tag{1.116}$$

unde I este puterea incidentă pe unitatea de arie, iar P este puterea absorbită pe unitatea de volum. Din relația (1.116) rezultă că σ_e poate fi scrisă numai funcție de coeficientul de atenuare Γ și de numărul N de atomi pe unitatea de volum, ceea ce conduce de următoarea formă explicită a acestei mărimi :

$$\sigma_e = \frac{\Omega\pi}{3\,\varepsilon_0\,\hbar\,cn} L\,|\mathbf{d}_{12}|^2\,g_L(\omega, \Omega). \tag{1.117}$$

Secțiunea eficace de absorbție pe atom poate fi corelată cu *tăria oscilatorului*, mărime definită prin raportul dintre secțiunile eficace de absorbție cuantică și clasică. Astfel, dacă stările implicate în tranziție sînt $|m>$ și $|n>$ tăria oscilatorului f_{mn} este dată de expresia

$$f_{mn} = \frac{(\sigma_e)_{cuantic}}{(\sigma_e)_{clasic}} = \frac{2m\Omega_{mn}|\mathbf{d}_{mn}|^2}{3e^2\hbar} \tag{1.118}$$

putînd avea valori pozitive sau negative funcție de natura tranziției (absorbție sau emisie), e/m fiind sarcina specifică a dipolului oscilant.

Tăriile oscilatorilor sînt deosebit de utile pentru estimarea elementelor matricei de dipol electric, atunci cînd lipsesc datele experimentale, utilizîndu-se în acest scop diferite reguli de însumare funcție de natura proceselor fizice implicate. De exemplu, pentru tranzițiile la care participă un singur electron, suma tăriilor oscilatorilor trebuie să fie unitară. În cazul în care participă la o tranziție particulară mai mulți electroni se utilizează regula de însumare Kuhn-Thomas, conform căreia suma tăriilor oscilatorilor care descriu tranzițiile pe un nivel dat este determinată de numărul electronilor implicați.

1.7.2. Fenomene de saturație ale mediului atomic

Din ecuația de polarizare (1.89) au fost deduse proprietățile de dispersie și absorbție ale mediului. Ecuațiile cuantice care descriu comportarea mediilor substanțiale trebuie să țină seama și de proprietățile de saturație ale acestor medii, care se manifestă prin *trecerea neatenuată a radiației prin mediu, cînd aceasta devine suficient de intensă*. Din punct de vedere fizic, proprietățile de saturație se explică astfel : energia absor-

bită de atomii substanței în prezența cîmpurilor electrice de frecvențe egale cu frecvența de tranziție, la nivele mici ale intensităților acestora, este cedată rapid mediului datorită fenomenelor de relaxare, rămînînd neschimbate proprietățile de absorbție.

Atunci cînd intensitatea radiației absorbite devine suficient de puternică, energia absorbită nu mai poate fi disipată prin *procesele de relaxare, astfel că are loc o redistribuție a populațiilor între nivelele care participă la tranziție, intervenind în expresiile lui* $\chi'(\omega)$ *și* $\chi''(\omega)$ *prin factorul* $(N_1 - N_2)$, în sensul *saturării* proprietăților de dispersie și absorbție.

O tratare mai riguroasă a proprietăților de saturație se poate face utilizîndu-se ecuația de populații (1.77):

— *în absența cîmpului electric*, la regim staționar, diferența de populație $(N_1 - N_2)$, atinge valoarea de echilibru dată de distribuția Boltzmann

$$(N_1 - N_2) = (N_1 - N_2)^e; \tag{1.119}$$

— *în prezența cîmpului electric*, se poate atinge din nou regimul staționar $\left(\frac{\partial}{\partial t}(N_1 - N_2) = 0\right)$, dar la o altă valoare de echilibru a diferenței de populație, determinată de ecuația

$$\frac{\hbar\Omega}{2}\,\frac{(N_1 - N_2) - (N_1 - N_2)^e}{T_1} = -\frac{i\omega}{4}(\mathbf{P}_0\mathbf{E}_0^* - \mathbf{P}_0^*\mathbf{E}_0). \tag{1.120}$$

Noua valoare de echilibru corespunde situației în care puterea medie cedată de *mediul atomic, prin procesele de relaxare, coincide cu puterea primită de la cîmp prin procesele de absorbție*. În acest caz, atomii nu mai absorb radiația, aceasta trecînd neatenuată prin mediu. Folosind expresia

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0(\chi'(\omega) + i\chi''(\omega))\,\mathbf{E} \tag{1.121}$$

pentru legătura dintre cîmp și polarizare, din ecuația (1.120) se obține

$$N_1 - N_2 = \frac{(N_1 - N_2)^e}{1 + \frac{I}{I_{sat}}\cdot\frac{g_L(\omega, \Omega)}{T_2/\pi}} \tag{1.122}$$

unde I_{sat} *reprezintă puterea pe unitatea de arie, a unei unde care la rezonanță reduce diferența de populație la jumătate din valoarea sa nesaturată*

$$I_{sat} = \frac{n\varepsilon c}{(2T_1\, T_2/\hbar^2)\, L(|\mathbf{d}_{12}|^2/3)}. \tag{1.123}$$

Scăderea diferenței de populație cu creșterea intensității cîmpului, peste o anumită valoare a acestuia, ca urmare a fenomenelor de saturație reprezintă un efect nedorit pentru laseri unde se urmărește obținerea unei inversii de populație cît mai ridicate. Din expresiile (1.110) și (1.122)

rezultă că atunci cînd fenomenele de saturație devin importante, coeficientul de absorbție Γ_{sat} are expresia

$$\Gamma_{sat} = \frac{\Omega\pi}{\hbar\varepsilon_0 cn} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2)^e \frac{1}{\pi} \times$$

$$\times \frac{\frac{1}{T_2}}{(\Omega - \omega)^2 + (1/T_2)^2 (1 + I/I_{sat})}.$$

Prin urmare $\Gamma_{sat}(\Omega) = \Gamma(\Omega) \frac{1}{1 + I/I_{sat}}$, (1.125)

efectul saturației manifestîndu-se prin scăderea înălțimii liniei de absorbție. Totodată, puterea absorbită pe unitatea de volum se saturează la valoarea

$$P_{sat}(\Omega) = \frac{\hbar\Omega}{2T_1} (N_1 - N_2)^e. \qquad (1.126)$$

4.7.3. Lărgirea omogenă și neomogenă a liniei spectrale

Linia spectrală lorentziană definită de funcția $g_L(\omega, \Omega)$, avînd expresia (1.111) se mai numește *lărgită „omogen"* întrucît procesele de relaxare care o determină acționează la fel pentru toți atomii, aceștia avînd aceeași frecvență de tranziție. Ca urmare, caracteristica de frecvență a polarizării macroscopice este identică cu cea a atomilor individuali.

Procesele tipice care determină lărgirea omogenă a liniei spectrale sînt : ciocnirile, cuplajul între atomi, cuplajul cu vibrațiile rețelei.

În cazul în care atomii sau moleculele unui ansamblu au frecvențe de tranziție Ω_i, diferite, linia spectrală emisă de ansamblu diferă de liniile spectrale lărgite omogen ale oscilatorilor individuali, fiind *lărgită neomogen*.

Procesele tipice care determină distribuția frecvențelor Ω_i de tranziție, sînt : efectul Doppler, defectele rețelei cristaline, neomogenitățile cîmpurilor implicate etc.

De exemplu, în cazul lărgirii Doppler, mișcarea moleculelor gazului determină modificarea frecvenței de tranziție $\omega_0 \to \Omega_i$ funcție de viteza de mișcare $\mathbf{v}_i$, pentru fiecare oscilator.

Astfel, în intervalul $d\Omega_i$ vor fi situate frecvențele de tranziție pentru dN molecule, din cele N molecule pe unitatea de volum încît

$$dN = N\, g_G(\omega_0, \Omega_i)\, d\Omega_i \qquad (1.127)$$

unde

$$g_G(\omega_0, \Omega_i) = \frac{[(4/\pi)\ln 2]^{1/2}}{\Delta\omega_G} \exp\left[-4(\ln 2)\frac{(\Omega_i - \omega_0)^2}{(\Delta\omega_G)^2}\right] \qquad (1.128)$$

este funcția de *forma gaussiană* a liniei spectrale, fiind satisfăcută condiția de normare

$$\int_{-\infty}^{+\infty} g_G(\omega_0, \Omega_i) d\Omega_i = 1. \qquad (1.129)$$

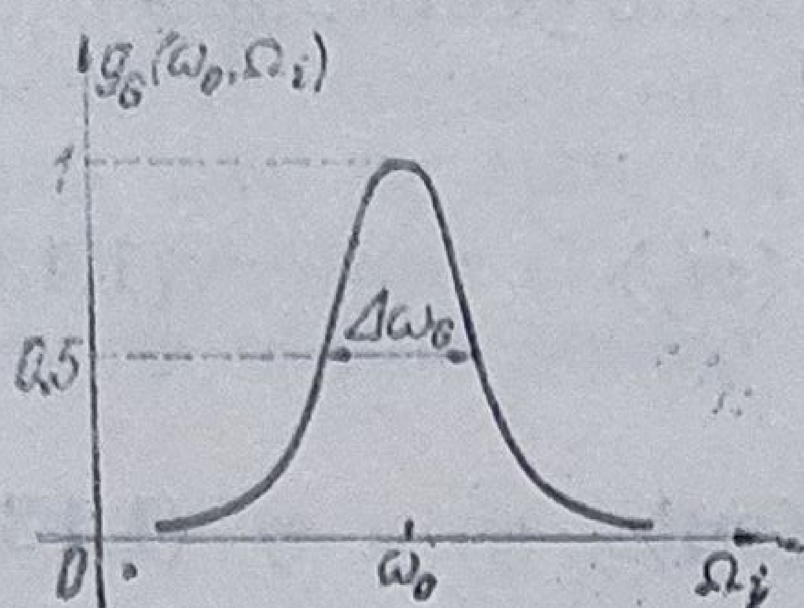


Fig. 1.5

Linia spectrală lărgită neomogen, are lărgimea $\Delta\omega_G$ definită prin analogie cu $\Delta\omega_L$ (fig. 1.5) fiind centrată pe frecvenţa ω_0.

Pentru evaluarea susceptibilităţii liniei neomogene lărgită Doppler trebuie să se ţină seama că polarizarea d**P**, pe frecvenţa ω rezultă prin însumarea contribuţiilor componentelor de forma $d\chi(\omega, \Omega_i)$, astfel încît se poate scrie

$$\chi(\omega) = \frac{\pi}{\hbar\varepsilon_0} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2) \int_{-\infty}^{+\infty} g_L(\omega, \Omega_i) g_G(\omega_0, \Omega_i)\, d\Omega_i \tag{1.130}$$

deci se pot evalua $\chi'(\omega)$ şi $\chi''(\omega)$.

1.8. Ecuaţiile de mişcare pentru tranziţiile de dipol magnetic ale sistemelor cu spinul 1/2

Momentul magnetic al electronului **m** poate fi descris utilizîndu-se matricele lui Pauli cu ajutorul operatorilor

$$m_x = -\frac{\gamma\hbar}{2}\begin{bmatrix}0 & 1\\ 1 & 0\end{bmatrix}; \quad m_y = -\frac{\gamma\hbar}{2}\begin{bmatrix}0 & -i\\ i & 0\end{bmatrix};$$
$$m_z = -\frac{\gamma\hbar}{2}\begin{bmatrix}1 & 0\\ 0 & -1\end{bmatrix} \tag{1.131}$$

unde γ este *raportul magneto-mecanic de spin.*

Pentru studiul interacţiei momentului magnetic al electronului cu cîmpul magnetic, se consideră un cîmp magnetic de inducţie

$$\mathbf{B} = \mathbf{B}_0 + \mathbf{B}' \tag{1.132}$$

unde $\mathbf{B}_0 = \mathbf{1}_z B_{0z}$ este un cîmp magnetic static aplicat în direcţia z, iar $\mathbf{B}'$ este partea dependentă de timp a inducţiei. Ca urmare, se poate pune în evidenţă hamiltonianul H_0 datorat atît interacţiilor intraatomice cît şi cîmpului magnetic static

$$H_0 = \begin{bmatrix} E_n + \frac{\gamma\hbar}{2} B_{0z} & 0 \\ 0 & E_n - \frac{\gamma\hbar}{2} B_{0z} \end{bmatrix} \tag{1.133}$$

la care se adaugă hamiltonianul de interacţie

$$W = -\mathbf{m}\mathbf{B}' = \frac{\gamma\hbar}{2}\begin{bmatrix} B'_z & B'_x - iB'_y \\ B'_x + iB'_y & -B'_z \end{bmatrix}. \tag{1.134}$$

Ecuaţia (1.53) de mişcare pentru operatori se scrie pentru operatorii nediagonali m_x şi m_y şi diagonal m_z sub forma [12]

$$\langle \dot{m}_x \rangle + \frac{\langle m_x \rangle}{T_2} = \gamma(\mathbf{B}' \times \langle \mathbf{m} \rangle)_x - \Omega \langle m_y \rangle \quad (1.135)$$

$$\langle \dot{m}_y \rangle + \frac{\langle m_y \rangle}{T_2} = \gamma(\mathbf{B}' \times \langle \mathbf{m} \rangle)_y + \Omega \langle m_x \rangle \quad (1.136)$$

respectiv

$$\langle \dot{m}_z \rangle + \frac{\langle m_z \rangle - \langle m_z \rangle^e}{T_1} = \gamma(\mathbf{B}' \times \langle \mathbf{m} \rangle)_z \quad (1.137)$$

unde $\Omega = \gamma B_{0z}$.

Dacă se trece de la momentul magnetic **m** la magnetizarea macroscopică **M** conform relaţiei $\mathbf{M} = N \langle \tilde{\mathbf{m}} \rangle$ prin analogie cu relaţia (1.59) pentru polarizare, ecuaţiile (1.135) — (1.137) se transformă astfel

$$\dot{M}_x + \frac{M_x}{T_2} = \gamma(\mathbf{B}' \times \mathbf{M})_x - \Omega M_y \quad (1.138)$$

$$\dot{M}_y + \frac{M_y}{T_2} = \gamma(\mathbf{B}' \times \mathbf{M})_y + \Omega M_x \quad (1.139)$$

$$\dot{M}_z + \frac{M_z - M_z^e}{T_1} = \gamma(\mathbf{B}' \times \mathbf{M})_z \quad (1.140)$$

cunoscute sub numele de *ecuaţiile Bloch*.

O formă mai compactă a acestor ecuaţii se obţine grupînd termenii din mebrul drept conform relaţiei (1.132). Se obţine sistemul

$$\dot{M}_x + \frac{M_x}{T_2} = \gamma(\mathbf{B} \times \mathbf{M})_x \quad (1.141)$$

$$\dot{M}_y + \frac{M_y}{T_2} = \gamma(\mathbf{B} \times \mathbf{M})_y \quad (1.142)$$

$$\dot{M}_z + \frac{M_z - M_z^e}{T_1} = \gamma(\mathbf{B} \times \mathbf{M})_z. \quad (1.143)$$

În sfîrşit, în absenţa relaxărilor se poate scrie

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma(\mathbf{B} \times \mathbf{M}). \quad (1.144)$$

Se observă că în cîmp magnetic static magnetizarea are mişcare de precesie în jurul cîmpului magnetic. Dacă se aplică un cîmp magnetic alternativ $\mathbf{B}'$, în planul xy, atunci componentele magnetizării după direcţiile x şi y joacă acelaşi rol ca şi polarizarea în cazul tranziţiilor de dipol electric în timp ce magnetizarea după axa z corespunde diferenţei de populaţie, conform relaţiilor

$$M_z = N \langle \widetilde{m_z} \rangle = N\, \widetilde{\mathrm{Urm}}\, (\rho m_z) = \frac{\gamma \hbar}{2} (N_2 - N_1). \quad (1.145)$$

Prin urmare, magnetizarea după axa z măsoară energia înmagazinată în sistemul cu spin, N_1 și N_2 fiind populațiile corespunzătoare celor două stări de spin. Ca și în cazul tranzițiilor de dipol electric, ecuațiilor de magnetizare (1.141) — (1.143) trebuie să li se adauge o ecuație de cîmp, care se obține analog cu ecuația (1.80) sub forma

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{B}) + \frac{n\gamma}{c}\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} + \frac{n^2}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{B}}{\partial t^2} = \mu_0 \nabla \times (\nabla \times \mathbf{M}). \tag{1.146}$$

În consecință, se poate construi o teorie a susceptibilității magnetice $\chi_m(\omega) = \mathbf{M}/\mathbf{H}$ prin aceeași metodă cu cea utilizată pentru susceptibilitatea electrică. Dependența de factorul de formă al liniei spectrale $g_L(\omega, \Omega)$ a susceptibilității magnetice arată că tranzițiile de dipol magnetic ale sistemului cu spin (între cele două stări de spin) au un caracter rezonant, avînd intensitatea maximă în jurul frecvenței Ω.

Prin urmare, schimbul de energie între cîmpul electromagnetic și sistemul cu spin, care stă la baza metodei de rezonanță paramagnetică de spin, se tratează cu ajutorul ecuațiilor Bloch prin analogie cu studiul tranzițiilor de dipol electric ale unui sistem atomic cu două nivele.

1.9. Analogia dintre sistemele atomice cu două nivele și sistemele cu spin

Analogia dintre sistemele atomice cu două nivele și sistemele cu spin evidențiată în paragraful anterior este mai completă după cum se va arăta în cele ce urmează.

Fie un sistem atomic cu două nivele desemnate prin $|a\rangle$ și $b\rangle$ în figura 1.6, rolul altor nivele fiind luat în considerare în studiul proceselor laser prin intermediul „pompajului" și al „pierderilor". Fie hamiltonianul sistemului atomic $\hat{H}_A$ și $\hat{W} = \hbar\hat{V}$ hamiltonianul de interacție astfel încît hamiltonianul total are expresia:

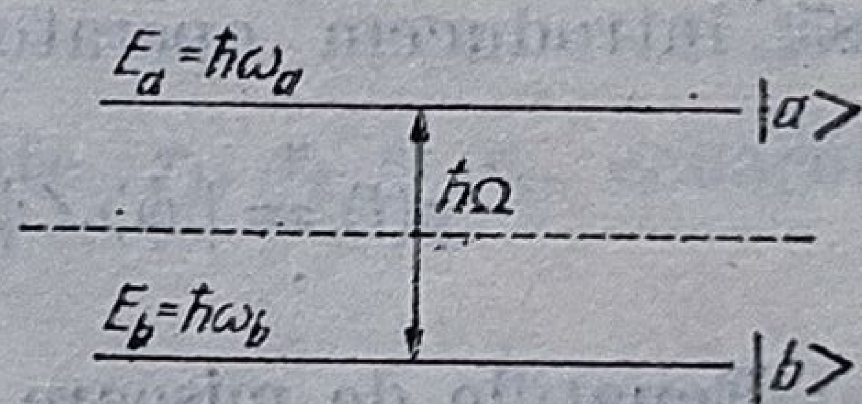


Fig. 1.6

$$\hat{H} = \hat{H}_A + \hat{W}, \tag{1.147}$$

unde

$$\hat{H}_A \psi_a(x) = \hbar\omega_a \psi_a(x) \text{ și } \hat{H}_A \psi_b(x) = \hbar\omega_b \psi_b(x) \tag{1.148}$$

iar

$$\hat{W} = \hbar\hat{V} = -ex\,E(\mathbf{r}, t) \tag{1.148'}$$

$\mathbf{r}$ specificînd un punct în interiorul atomului.

Interacția sistemului atomic cu un cîmp coerent rezonant determină tranziții atomice cu frecvența

$$\Omega = \frac{E_a - E_b}{\hbar} = \omega_a - \omega_b. \tag{1.149}$$

Sub influența perturbației, sistemul aflat inițial în starea $|a\rangle$ la momentul $t = t_0$, poate suferi tranziții induse în starea $|b\rangle$ astfel încît la

momentul $t > t_0$, funcția de undă atomică se poate exprima ca o superpoziție liniară a stărilor $|a\rangle$ și $|b\rangle$ astfel

$$\psi(x, t) = a(t)\ \psi_a(x) + b(t)\ \psi_b(x) \tag{1.150}$$

care verifică ecuația Schrödinger

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = (\hat{H}_A + \hbar \hat{V})\psi = i\hbar(\dot{a}\psi_a(x) + \dot{b}\psi_b(x)). \tag{1.151}$$

Ținînd seama d econdiția de ortonormare a funcțiilor de undă $\psi_a(x)$ și $\psi_b(x)$ se obține sistemul

$$i\ \dot{a} = \omega_a a + V_{ab} b \tag{1.152}$$

$$i\ \dot{b} = V_{ba} a + \omega_b b \tag{1.153}$$

unde

$$V_{ab} = V_{ba}^* = -\frac{E(\mathbf{r}, t)e}{\hbar}(\psi_a,\ x\psi_b) \tag{1.154}$$

iar

$$V_{aa} = V_{bb} = 0,$$

in mod evident (stările staționare au parități bine definite spre deosebire de superpoziția de stări).

Să reprezentăm starea descrisă de funcția de undă (1.150) prin vectorul coloană

$$|\psi\rangle_t = \begin{bmatrix} a(t) \\ b(t) \end{bmatrix} \tag{1.155}$$

și să introducem operatorul densitate atomic

$$\rho(t) = |\psi\rangle_t \langle\psi|_t = \begin{bmatrix} a \\ b \end{bmatrix} [a^*\ b^*] = \begin{bmatrix} |a|^2 & ab^* \\ a^*b & |b|^2 \end{bmatrix}. \tag{1.156}$$

Ecuațiile de mișcare (1.152) și (1.153) se scriu matriceal sub forma

$$i\frac{d}{dt}\begin{bmatrix} a \\ b \end{bmatrix} = [H]\begin{bmatrix} a \\ b \end{bmatrix}, \tag{1.157}$$

unde

$$[H] = \begin{bmatrix} \omega_a & 0 \\ 0 & \omega_b \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} 0 & V_{ab} \\ V_{ba} & 0 \end{bmatrix} \tag{1.158}$$

astfel încît din (1.156) și (1.158) rezultă pentru operatorul densitate ecuația de mișcare cunoscută

$$i\frac{d\hat{\rho}}{dt} = [\hat{H}, \hat{\rho}]. \tag{1.159}$$

Matricea densitate se poate exprima funcție de matricele lui Pauli sub forma

$$\rho(t) = \frac{1}{2}(\rho_0 I + \mathbf{r}\sigma) = \frac{1}{2}\begin{bmatrix} \rho_0 + r_3 & r_1 - ir_2 \\ r_1 + ir_2 & \rho_0 - r_3 \end{bmatrix} \tag{1.160}$$

de unde ţinîndu-se seama de (1.56) rezultă

$$\rho_0 = |a|^2 + |b|^2 = 1 \tag{1.161}$$

$$r_1 = ab^* + a^*b \tag{1.162}$$

$$r_2 = \mathrm{i}(ab^* - a^*b) \tag{1.163}$$

$$r_3 = |a|^2 - |b|^2. \tag{1.164}$$

În mod asemănător, hamiltonianul $\hat{H}$ al sistemului se exprimă cu ajutorul matricelor lui Pauli astfel

$$H = \frac{1}{2}\begin{bmatrix} 0 & V_1 - \mathrm{i}V_2 \\ V_1 + \mathrm{i}V_2 & 0 \end{bmatrix} = \frac{1}{2}(V_1\sigma_1 + V_2\sigma_2 + \omega_0\sigma_3) \tag{1.165}$$

unde
$$V_1 - \mathrm{i}V_2 = 2V_{ab} = 2\,V^*_{ba}. \tag{1.166}$$

Înlocuind dezvoltările (1.160) şi (1.156) în ecuaţia (1.159) şi identificînd coeficienţii matricelor lui Pauli se obţin egalităţile importante

$$\dot{\rho}_0 = 0 \tag{1.167}$$

$$\dot{r}_1 = V_2r_3 - \omega_0r_2 \tag{1.168}$$

$$\dot{r}_2 = \omega_0r_1 - V_1r_3 \tag{1.169}$$

$$\dot{r}_3 = V_1r_2 - V_2r_1 \tag{1.170}$$

unde
$$r_1^2 + r_2^2 + r_3^2 = r_0^2 = 1. \tag{1.171}$$

Dacă definim un vector $\mathbf{r}$ de componente r_1, r_2 şi r_3, ecuaţiile (1.168) — (1.170) se scriu compact sub forma

$$\frac{\mathrm{d}\mathbf{r}}{\mathrm{d}t} = \boldsymbol{\omega} \times \mathbf{r}, \tag{1.172}$$

unde vectorul $\boldsymbol{\omega}$ are componentele $\omega_1 = V_1$, $\omega_2 = V_2$ şi $\omega_3 = 0$.

Prin urmare, evoluţia în timp a sistemului cu două nivele poate fi descrisă printr-o mişcare de precesie a vectorului unitar $\mathbf{r}(t)$ în jurul vectorului $\boldsymbol{\omega}(t)$. În acelaşi timp, ecuaţia (1.167) exprimă conservarea probabilităţii.

Din calcul rezultă, totodată, expresiile

$$r_1 = \mathrm{Urm}\,(\rho\sigma_1) = \langle\sigma_1\rangle \text{ şi } \mathbf{r} = \langle\boldsymbol{\sigma}\rangle \tag{1.173}$$

$$H = \frac{1}{2}\boldsymbol{\omega\sigma} \quad \text{deci } \langle H\rangle = \frac{1}{2}\boldsymbol{\omega}\mathbf{r}. \tag{1.174}$$

Aceste expresii permit evidenţierea mai precisă a corespondenţei existente între un sistem atomic cu două nivele şi un sistem cu spin, ţinîndu-se seama şi de analogia dintre ecuaţiile (1.144) şi (1.172). Se observă că $\mathbf{r}$ este proporţional cu valoarea medie a momentului magnetic $\mathbf{m}$, iar

ω este proporțional cu inducția magnetică **B**, spațiul matematic al vectorului **r** identificîndu-se în acest fel cu spațiul fizic. Ca urmare, vectorul **r** se mai numește *pseudospin*. Această analogie a permis, ca o serie de rezultate cunoscute de la studiul rezonanței de spin să fie stabilite și în domeniul optic, după cum se va arăta ulterior la studiul ecoului fotonic, superradianței etc. O analiză sistematică a principalelor analogii dintre un sistem atomic și spin este prezentată în lucrarea [80] (tabelul 1.2).

Tabelul 1.2

Analogia	Sisteme cu spin	Pseudo-spin (sisteme cu două nivele)
Specificarea stărilor	$\downarrow$ $\varphi\downarrow$; $\uparrow$ $\varphi\uparrow$	ψ_1 ; ψ_2
Energia	$-\frac{1}{2}\hbar\Omega$; $\frac{1}{2}\hbar\Omega$	E_1 ; E_2
Superpoziția stărilor	$\varphi = c_1\varphi\downarrow + c_2\varphi\uparrow$	$\psi = c_1\psi_1 + c_2\psi_2$
Precesia liberă	$c_1 = a\exp[i\Omega t/2]$; $c_2 = b\exp[i\Omega t/2]$	$c_1 = a\exp[-i\,E_1t/\hbar]$; $c_2 = b\exp[-i\,E_2t/\hbar]$
Ecuația de mișcare a valorii medii	$\frac{d}{dt}\langle \mathbf{s}\rangle = m\langle \mathbf{s}\rangle\times\mathbf{B}$	$\frac{d}{dt}\mathbf{r} = \boldsymbol{\omega}\times\mathbf{r}$
Răspunsul la un cîmp coerent rezonant	$\langle s_x\rangle, \langle s_y\rangle, \langle s_z\rangle$ (Comportări identice)	r_1, r_2, r_3
Răspunsul la un impuls $\pi/2$ + un impuls π	Ecoul de spin	Ecoul fotonic

O abordare mai completă a analogiilor semicuantice evidențiate dintre un sistem atomic cu două nivele și un sistem cu spin este posibilă în teoria cuantică.

1.10. Ecuațiile Maxwell-Bloch ale interacției cîmp-substanță

Ecuațiile Maxwell-Bloch descriu interacția cîmpului electromagnetic cu un mediu atomic cu două nivele (fig. 1.6) situat în interiorul unei cavități Fabry-Pérot (fig. 1.7).

Fie ω frecvenţa cîmpului incident, presupus coerent şi ω_c frecvenţa de rezonanţă a cavităţii pasive, astfel încît $|\omega - \omega_c| \ll \omega$ şi $|\omega - \Omega| \ll \omega$. Reflectivitatea oglinzilor s-a notat pe figură cu R, lungimea cavităţii Fabry-Pérot fiind L.

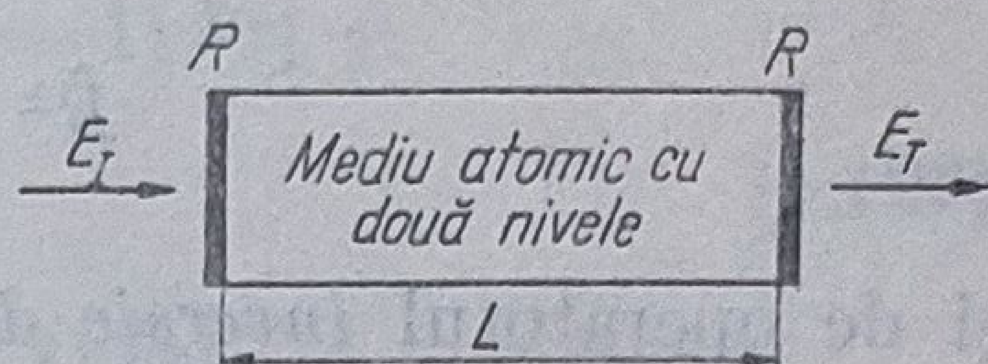


Fig. 1.7

În *aproximaţia Wigner-Weisskopf*, nivelele energetice au un timp de viaţă finit, dezexcitarea lor făcîndu-se exponenţial, astfel încît funcţia de undă dependentă de timp a stării $|a\rangle$ are forma

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \psi_a(\mathbf{r}) \exp\left[-\mathrm{i}\left(\omega_a - \mathrm{i}\frac{\gamma_a}{2}\right)t\right]. \quad (1.175)$$

Întrucît

$$|\psi(\mathbf{r}, t)|^2 = \exp(-\gamma_a t)\, |\psi(x, 0)|^2 \quad (1.176)$$

rezultă pentru *timpul de viaţă* al stării $|a\rangle$ expresia $\tau_a = \dfrac{1}{\gamma_a}$, γ_a fiind constanta de relaxare a stării $|a\rangle$. Analog, parametrii de dezexcitare ai stării $|b\rangle$ sînt τ_b şi γ_b. Întrucît pentru tranziţiile coerente între stările $|a\rangle$ şi $|b\rangle$ procesele caracterizate de constantele γ_a şi γ_b reprezintă pierderi, rezultă că putem descrie sistemul atomic „cuplat" cu „rezervorul de pierderi" prin introducerea fenomenologică a termenilor de amortizare

$$\omega_a \to \omega_a - \mathrm{i}(\gamma_a/2) \quad (1.177)$$

şi

$$\omega_b \to \omega_b - \mathrm{i}(\gamma_b/2)$$

în ecuaţia (1.157)

$$\mathrm{i}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\begin{bmatrix} a \\ b \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \omega_a - \mathrm{i}(\gamma_a/2) & V_{ab} \\ V_{ab} & \omega_b - \mathrm{i}(\gamma/2) \end{bmatrix}\begin{bmatrix} a \\ b \end{bmatrix}. \quad (1.178)$$

Definind matricea de amortizare

$$\Gamma = \begin{bmatrix} \gamma_a & 0 \\ 0 & \gamma_b \end{bmatrix} \quad (1.179)$$

şi ţinîndu-se seama de (1.178), ecuaţia de mişcare (1.159) pentru operatorul densitate capătă forma

$$\frac{\partial \hat{\rho}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = -\frac{\mathrm{i}}{\hbar}[\hat{H}_A - \mathbf{d}\mathbf{E}, \hat{\rho}] - \frac{1}{2}[\hat{\Gamma}\hat{\rho} + \hat{\rho}\hat{\Gamma}] \quad (1.180)$$

unde $\mathbf{d} = e\,\mathbf{r}$ este momentul de dipol electric. Ţinîndu-se seama de procesele care determină relaxarea nivelelor $|a\rangle$ şi $|b\rangle$ rezultă

$$\gamma_a = \gamma_\perp = T_2^{-1} \text{ şi } \gamma_b = \gamma_{||} = T_1^{-1}. \quad (1.181)$$

Atomul i cu două nivele este descris de *operatorii de progresie şi regresie* $\hat{r}_i^+$, respectiv $\hat{r}_i^-$ şi de operatorul $\hat{r}_{3i} = \dfrac{1}{2}(\hat{r}_i^+\hat{r}_i^- - \hat{r}_i^-\hat{r}_i^+)$. Ca

urmare un colectiv de N atomi va fi descris de *operatorii de dipol colectiv* $\hat{R}_{\pm}$ definiți prin

$$\hat{R}^{\pm} = \sum_{i=1}^{N} \hat{r}_i^{\pm} \exp [\pm \mathrm{i}\mathbf{k}_0\mathbf{r}_i] \tag{1.182}$$

și de operatorul *inversie de populație*

$$\hat{R}_3 = \sum_{i=1}^{N} \hat{r}_{3i}. \tag{1.183}$$

În relațiile de mai sus $\mathbf{k}_0$ este vectorul de undă al cîmpului injectat, iar $\mathbf{r}_i$ vectorul de poziție al atomului. (Se știe că operatorii $\hat{R}^{\pm}$ și $\hat{R}_3$ satisfac relațiile de comutare $[\hat{R}^+, \hat{R}^-] = 2\,\hat{R}_3$, $[\hat{R}_3, \hat{R}^{\pm}] = \pm \hat{R}^{\pm}$).

Ținîndu-se seama de notațiile (1.181) — (1.183), ecuația de mișcare (1.180) este echivalentă cu următorul sistem de ecuații pentru elementele matricei densitate

$$\frac{\partial \hat{\rho}_{21}}{\partial t} = -\left(\mathrm{i}\omega_0 + \frac{1}{T_2}\right)\hat{\rho}_{21} + i\hbar^{-1}\,\mathbf{d}\,\mathbf{E}\,\hat{R}_3 \tag{1.184}$$

$$\frac{\partial \hat{R}_3}{\partial t} = 2\,\mathrm{i}\hbar^{-1}\,\hat{\mathbf{d}}\mathbf{E}\,(\hat{\rho}_{21} - \hat{\rho}_{21}^*) - \frac{\hat{R}_3 + 1}{T_1} \tag{1.185}$$

unde $\hat{\rho}_{12} = \hat{\rho}_{21}^*$, iar $\hat{R}_3 = \hat{\rho}_{22} - \hat{\rho}_{11}$.

În continuare, ținîndu-se seama de expresia cîmpului electric

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}^{(+)}(\mathbf{r}, t)\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega t} + \mathbf{E}^{(-)}(\mathbf{r}, t)\,\mathrm{e}^{(\mathrm{i}\omega t)} \tag{1.186}$$

unde $\mathbf{E}^{(+)} = \mathbf{E}^{(-)*}$, ecuațiile (1.184) și (1.185) se pot scrie sub forma

$$\frac{\partial \hat{R}^{(\pm)}}{\partial t} = -\,[\mathrm{i}(\omega - \omega_0) + T_2]\hat{R}^{(\pm)} + \mathrm{i}\hat{\mathbf{d}}\mathbf{E}^{(\pm)}\hat{D} \tag{1.187}$$

$$\frac{\partial \hat{D}}{\partial t} = -\frac{\hat{D} + 1}{T_1} + 2\,\mathrm{i}\hat{\mathbf{d}}\hbar^{-1}(\mathbf{E}^{(-)}\hat{R}^{(+)} - \mathbf{E}^{(+)}\hat{R}^{(-)}) \tag{1.188}$$

unde s-au introdus notațiile

$$\hat{D}(\mathbf{r}, t) = \hat{R}_3, \text{ conform definiției (1.64)}; \tag{1.189}$$

$$\hat{\rho}_{12} = \hat{R}^{(-)}(\mathbf{r}, t)\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega t},$$
$$\hat{\rho}_{21} = \hat{R}^{(+)}(\mathbf{r}, t)\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega t}; \tag{1.190}$$

astfel încît
$$\hat{R}^{(-)} = \hat{R}^{(+)} \tag{1.191}$$

și s-au neglijat (aproximația undei rotitoare) termenii de forma $\mathrm{e}^{2\mathrm{i}\omega t}$. La ecuațiile (1.187) și (1.188) trebuie adăugată ecuația de cîmp (în aproximația undelor plane)

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}(z, t)}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{E}(z, t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}(z, t)}{\partial t^2} \tag{1.192}$$

astfel că polarizarea macroscopică se comportă ca o sursă de cîmp.

În cele ce urmează se admit pentru mărimile $\mathbf{E}^{(+)}(z, t)$, $\hat{R}^{(+)}(z, t)$ şi $\hat{D}(z, t)$ din cavitatea Fabry-Pérot dezvoltările [235]:

$$\mathbf{E}^{(+)}(z, t) = \sum_{m=1}^{\infty} \mathbf{E}_m(z, t) \exp[\mathrm{i}\,(2m - 1)\,kz] + \\ + \sum_{m=-1}^{-\infty} \mathbf{E}_m(z, t) \exp[\mathrm{i}\,(2m + 1)\,kz] \tag{1.193}$$

$$\mathbf{P}(z, t) = \sum_{m=1}^{\infty} \mathbf{P}_m(z, t) \exp[\mathrm{i}(2m - 1)\,kz] + \\ + \sum_{m=-1}^{-\infty} \mathbf{P}_m(z, t) \exp[\mathrm{i}\,(2m + 1)\,kz] \tag{1.194}$$

$$\hat{D}(z, t) = \hat{D}_0(z, t) + \sum_{m=1}^{\infty} \hat{D}_m(z, t) \exp(\mathrm{i}\,2m\,kz) + \mathrm{c.c.}, \tag{1.195}$$

care permit luarea în considerare a efectului undelor staţionare din cavitate. (Forma acestor dezvoltări se obţine cu ajutorul teoriei perturbaţiilor (Anexa 3).

În continuare, se trunchiază dezvoltările (1.193) — (1.195) sub forma

$$\mathbf{E}^{+}(z, t) = \mathbf{E}_{+}(z, t)\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}kz} + \mathbf{E}_{-}(z, t)\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}kz} \tag{1.196}$$

$$\mathbf{P}^{+}(z, t) = \mathbf{P}_{+}(z, t)\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}kz} + \mathbf{P}_{-}(z, t)\mathrm{e}^{-\mathrm{i}kz} \tag{1.197}$$

respectiv

$$\hat{D}(z, t) = \hat{D}_0(z, t) + \hat{D}_1(z, t)\,\mathrm{e}^{2\mathrm{i}kz} + \mathrm{c.c.} \tag{1.198}$$

unde s-au introdus notaţiile

$$\mathbf{E}_{+}(z, t) = \mathbf{E}_1(z, t),\ \ \mathbf{E}_{-}(z, t) = \mathbf{E}_{-1}(z, t)$$

$$\mathbf{P}_{+}(z, t) = \mathbf{P}_1(z, t)\ \text{şi}\ \mathbf{P}_{-}(z, t) = \mathbf{P}_{-1}(z, t).$$

Aceste trunchieri sînt posibile ca urmare a faptului că pentru $|m| > 1$ amplitudinile sînt neglijabile, după cum se poate verifica [95]. În plus, se fac aproximaţiile de amplitudini lent variabile sub forma

$$\left|\frac{\partial E_+}{\partial z}\right| \ll \frac{|E_+|}{k} \quad \text{şi} \quad \left|\frac{\partial E_+}{\partial t}\right| \ll \frac{|E_+|}{\omega} \tag{1.199}$$

şi se ţine şi de mişcarea termică a atomilor prin intermediul distribuţiei gaussiene

$$g(u)\,du = \frac{1}{\sqrt{\pi}\,\sigma} \exp\left[-(u/\sigma)^2\right] du \tag{1.200}$$

unde u este viteza după direcţia z, a atomilor.

Cu aceste observaţii, ecuaţiile (1.187), (1.188) şi (1.192) se transformă astfel [82]:

$$\frac{\partial P_+}{\partial t} = -\left[\frac{1}{T_2} - \mathrm{i}(\Delta + u')\right] P_+ + \frac{\mathrm{i}d}{\hbar}(E_+^* D_0 + E_-^* D_1) \tag{1.201}$$

$$\frac{\partial P_-}{\partial t} = -\left[\frac{1}{T_2} - \mathrm{i}(\Delta - u')\right] P_- + \frac{\mathrm{i}d}{\hbar}(E_-^* D_0 + E_+^* D_1) \tag{1.202}$$

$$\frac{\partial D_0}{\partial t} = -\frac{D_0 + 1}{T_1} + \frac{\mathrm{i}d}{2\hbar}(E_+^* P_+ + E_-^* P_- - \text{c.c.}) \tag{1.203}$$

$$\frac{\partial D_1}{\partial t} = \frac{D_1}{T_1} + \frac{\mathrm{i}d}{4\hbar}(1 - \mathrm{i})\, E_+^* P_- + (1 + \mathrm{i})\, E_-^* P_+ - \text{c.c.})] \tag{1.204}$$

$$\frac{\partial E_{+(-)}}{c\,\partial t} \pm \frac{\partial E_{+(-)}}{\partial z} = \mathrm{i}g \int_{-\infty}^{+\infty} P_{+(-)}^* \, g(u')\, du' \tag{1.205}$$

cunoscute sub numele de *ecuaţiile Maxwell-Bloch*. S-a notat $u' = \dfrac{u}{T_2}$ iar Δ este dezacordul atomic, expresia coeficientului g fiind evidentă $\left(g = \dfrac{\omega_0 d N}{c\varepsilon}, N \text{ fiind concentraţia atomilor}\right)$.

Sistemul de ecuaţii (1.201) — (1.205) trebuie completat cu condiţiile la limită care reflectă conservarea componentelor tangenţiale ale cîmpurilor pe oglinzile cavităţii

$$E_+(L, t) = \sqrt{R}\, E_-(L, t)\, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\theta} + \sqrt{1 - R}\, E_I(t) \tag{1.206}$$

$$E_R(t) = -\sqrt{R}\, E_I(t) + \sqrt{1 - R}\, E_-(L, t)\, \mathrm{e}^{\mathrm{i}\theta} \tag{1.207}$$

$$E_-(0, t) = \sqrt{R} E_+(0, t) \tag{1.208}$$

$$E_T(t) = \sqrt{1 - R}\, E_+(0, t) \tag{1.209}$$

unde E_I este cîmpul incident, E_T — cîmpul transmis, E_R — cîmpul reflectat iar $\theta = \dfrac{\omega_c - \Omega}{\nu}$ (unde $\nu = c/2L$) este dezacordul cavităţii.

În condiţiile în care $\sigma = \Delta = \theta = 0$, ecuaţiile Maxwell-Bloch se scriu sub formă simplificată, în care toate mărimile sînt reale, astfel

$$\frac{\partial P_+}{\partial t} = -\frac{P_+}{T_2} + \frac{d}{\hbar}(E_+ D_0 + E_- D_1) \tag{1.210}$$

$$\frac{\partial P_-}{\partial t} = -\frac{P_-}{T_2} + \frac{d}{\hbar}(E_- D_0 + E_+ D_1) \tag{1.211}$$

$$\frac{\partial D_0}{\partial t} = -\frac{D_0 + 1}{T_1} - \frac{d}{\hbar}(E_+ P_+ + E_- P_-) \tag{1.212}$$

$$\frac{\partial D_1}{\partial t} = -\frac{D_1}{T_1} - \frac{d}{\hbar}(E_+P_- + E_-P_+) \tag{1.213}$$

$$\frac{1}{c}\frac{\partial E_+}{\partial t} + \frac{\partial E_+}{\partial z} = gP_+ \tag{1.214}$$

$$\frac{1}{c}\frac{\partial E_-}{\partial t} - \frac{\partial E_-}{\partial z} = gP_- . \tag{1.215}$$

O formă deosebit de utilă a acestor ecuații se obține în *aproximația cîmpului mediu*, introdusă de Bonifacio și Lugiato [90] prin următoarele ipoteze :

a) variabilele din cavitate pot fi mediate spațial peste lungimea cavității, astfel încît

$$\tilde{F}(z, t) = \frac{1}{L}\int_0^L F(z, t)\, dz = F(t) ; \tag{1.216}$$

b) un produs de două variabile se mediază spațial sub forma

$$\widetilde{F(z, t)\, G(z, t)} = \widetilde{F(z, t)}\; \widetilde{G(z, t)} = F(t)\, G(t) ; \tag{1.217}$$

c) $$\tilde{P}_+ = \tilde{P}_- = P \text{ și } \tilde{E}_+ = \tilde{E}_- = E. \tag{1.218}$$

În aproximația cîmpului mediu ecuațiile Maxwell-Bloch (1.210) — (1.215) capătă forma standard pentru studiul bistabilității optice

$$\frac{\partial P}{\partial t} + \frac{P}{T_2} = \frac{d}{\hbar} ED \tag{1.219}$$

$$\frac{\partial D}{\partial t} + \frac{D + 1}{T_1} = \frac{d}{\hbar} EP \tag{1.220}$$

$$\frac{\partial E}{\partial t} + \frac{E - E_I/\sqrt{T})}{\tau_c} = qP \tag{1.221}$$

unde $D(t) = \tilde{D}_0 + \tilde{D}_1$.

Observație. Sistemul de ecuații Maxwell-Bloch sub forma (1.219) — (1.221) poate fi stabilit și pe altă cale utilizîndu-se ecuațiile de mișcare pentru tranzițiile de dipol electric ale lui Pantell [12].

1.11. Tratarea cuantică a interacției cîmp-substanță

În general, hamiltonianul unui sistem atomic aflat în prezența radiației are forma

$$\hat{H} = \hat{H}_E + \hat{H}_R + \hat{H}_I \tag{1.222}$$

unde $\hat{H}_E$ este hamiltonianul atomic, $\hat{H}_R$ este hamiltonianul cîmpului de radiaţie, iar $\hat{H}_I$ hamiltonianul de interacţie. Hamiltonianul cuantic al cîmpului de radiaţie are expresia (Anexa 2)

$$\hat{H}_R = \sum_k \hbar\omega_k\left(\hat{a}_k^+ \hat{a}_k + \frac{1}{2}\right) \tag{1.223}$$

unde $\hat{a}_k^+$ şi $\hat{a}_k$ sînt operatorii de creare şi anihilare.

În cele ce urmează se vor exprima funcţie de operatorii de creare şi anihilare (cuantificarea a doua) şi ceilalţi termeni ai hamiltonianului, $\hat{H}_E$ şi $\hat{H}_I$. Teoria cuantificării a doua a hamiltonianului atomic este prezentată în Anexa 2.

O altă metodă directă folosită în acest scop utilizează ecuaţia cu vectorii proprii şi valori proprii a lui $\hat{H}_E$

$$\hat{H}_E|u_r\rangle = \hbar\omega_r|u_r\rangle \tag{1.224}$$

vectorii $|u_r\rangle$ satisfăcînd condiţia de ortonormare şi închidere

$$\sum_r |u_r\rangle\langle u_r| = 1. \tag{1.225}$$

Pe baza relaţiilor (1.224) şi (1.225) hamiltonianul $\hat{H}_E$ se poate exprima sub forma

$$\hat{H}_E = \sum_r |u_r\rangle\langle u_r|\, \hat{H}_E \sum_s |u_s\rangle\langle u_s| = \sum_r \hbar\omega_r|u_r\rangle\langle u_r|. \tag{1.226}$$

Pe de altă parte, întrucît se poate scrie

$$|u_r\rangle\langle u_s|u_n\rangle = |u_r\rangle\,\delta_{sn} \tag{1.227}$$

rezultă că operatorul $|u_r\rangle\langle u_s|$ anihilează starea atomică $|u_s\rangle$ şi crează starea atomică $|u_r\rangle$.

În continuare este util să se definească operatorii de creare şi anihilare $\hat{b}_r^+$ şi $\hat{b}_r$ ai stărilor atomice prin analogie cu operatorii $\hat{a}_k^+$ şi $\hat{a}_k$ ai cîmpului şi avînd aceleaşi proprietăţi, prin corespondenţa

$$\hat{b}_r^+\hat{b}_s \leftrightarrow |u_r\rangle\langle u_s| \tag{1.228}$$

astfel încît se pot scrie ecuaţiile

$$\hat{H}_E = \sum_r \hbar\omega_r \hat{b}_r^+ \hat{b}_r \tag{1.229}$$

şi

$$\hat{b}_r^+ \hat{b}_s |u_n\rangle = |u_r>\delta_{sn}. \tag{1.230}$$

(Utilizarea notaţiilor $\hat{b}_r^+$, $\hat{b}_r$ diferite de $\hat{a}_k^+$, $\hat{a}_k$ a fost impusă de prezenţa hamiltonianului de interacţie $\hat{H}_I$ în care trebuie să intervină ambele tipuri de operatori). Pentru evaluarea hamiltonianului de interacţie, în aproximaţia de dipol electric, se scrie acesta sub forma

$$\hat{H}_{ED} = e\sum_k \hat{\mathbf{r}}_k E_T(0) = e\,\hat{\mathbf{D}}E_T(0) \tag{1.231}$$

unde $e\mathbf{D} = \sum_k e\,\mathbf{r}_k$ este momentul de dipol atomic (cele Z sarcini negative $-e$ sînt poziţionate în punctele $\mathbf{r}_k$), iar $\mathbf{E}_T = -\dfrac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}$, $\mathbf{A}$ fiind potenţialul

vector (cealaltă componentă a cîmpului electric $\mathbf{E}_L$ satisface ecuația $\mathbf{E}_L = -\Delta V$, V fiind potențialul scalar al undei).

Prin urmare, ținîndu-se seama de (1.228) se obține succesiv

$$\hat{\mathbf{D}} = \sum_r |u_r\rangle \langle u_r| \hat{\mathbf{D}} \sum_s |u_s\rangle\langle u_s| = \sum_{rs} \mathbf{D}_{rs} |u_r\rangle \langle u_s| = \sum_{rs} \mathbf{D}_{rs} \hat{b}_r^+ \hat{b}_s \tag{1.232}$$

unde $\mathbf{D}_{rs} = \langle u_r|\hat{\mathbf{D}}|u_s\rangle$ este elementul de matrice al momentului de dipol atomic. Dacă se ține seama de expresia cuantificată a lui $\mathbf{E}_T(0)$ și de rezultatele (1.232), expresia (1.231) a lui $\hat{H}_{DE}$ se pune sub forma

$$\hat{H}_{DE} = \mathrm{i} \sum_k \mathscr{D}_k \hbar (\hat{a}_k e^{-\mathrm{i}\omega_k t} - \hat{a}_k^+ e^{\mathrm{i}\omega_k t}) (\hat{b}_r^+ \hat{b}_s + \hat{b}_s^+ \hat{b}_r) \tag{1.233}$$

unde $\mathscr{D}_k \hbar = e\sqrt{(\hbar\omega_k/2\varepsilon_0 V)}\ \varepsilon_k \mathbf{D}_{rs}$, iar indicii r și s se referă la o pereche particulară de stări atomice $|r\rangle$ și $|s\rangle$.

Cei patru termeni din expresia (1.233) pun în evidență tipurile de interacție permise, de dipol electric, conform tabelului 1.3.

Tabelul 1.3

Forma termenului	Diagrama de interacție ← Stări finale ($\hbar\omega_s > \hbar\omega_r$) Stări inițiale →	Descrierea interacției
$\hat{a}_k\ \hat{b}_s^+\ \hat{b}_r$	$\vec{k}$; $\lvert s\rangle \equiv \lvert u_s\rangle$; $\lvert r\rangle \equiv \lvert u_r\rangle$	Excitarea atomului prin absorbția unui foton din starea $\lvert r\rangle$ în starea $\lvert s\rangle$
$\hat{a}_k^+\ \hat{b}_r^+\ \hat{b}_s$	$\vec{k}$; $\lvert s\rangle$; $\lvert r\rangle$	Dezexcitarea atomului prin emisia unui foton din starea $\lvert s\rangle$ în starea $\lvert r\rangle$
$\hat{a}_k\ \hat{b}_r^+\ \hat{b}_s$	$\lvert r\rangle$; $\vec{k}$; $\lvert s\rangle$	Procese radiative de ordin superior
$\hat{a}_k^+\ \hat{b}_s^+\ \hat{b}_r$	$\vec{k}$; $\lvert r\rangle$; $\lvert s\rangle$	

Expresia (1.233) a hamiltonianului de interacție poate fi utilizată pentru evaluarea ratelor de tranziție $|r\rangle \rightleftarrows |s\rangle$ prin absorbția și emisia de fotoni, cu considerarea riguroasă a emisiei spontane, problemă nerezolvată satisfăcător de teoria semicuantică.

În acest scop ne vom referi la atomul aflat în starea $|r\rangle$, în prezența radiației caracterizată de n_k fotoni în modul k, sistemul global fiind astfel în starea $|n_k, r\rangle$. Elementele de matrice

$$\langle n_k - 1, s| \hat{H}_{DE} | n_k, r\rangle = - \mathrm{i}\hbar \mathscr{D}_k \sqrt{n_k}\, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_k t} \tag{1.234}$$

$$\langle n_k + 1, r| \hat{H}_{DE} | n_k, s\rangle = - \mathrm{i}\hbar \mathscr{D}_k \sqrt{n_k + 1}\, \mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_k t} \tag{1.235}$$

descriu procesele de absorbție, respectiv de emisie (starea inițială este în dreapta hamiltonianului). Pentru calculul probabilităților de tranziție, în procesele de mai sus, se utilizează teoria perturbațiilor dependente de timp dezvoltată în Anexa 3.

Astfel, dacă se evaluează probabilitățile pentru tranzițiile $|r\rangle \rightleftarrows |s\rangle$ se obține

$$P_{rs} = 2\pi \mathscr{D}_k^2 n_k t\, \delta(\Omega - \omega_k) \tag{1.236}$$

respectiv

$$P_{sr} = 2\pi \mathscr{D}_k^2 (n_k + 1)\, t\delta(\Omega - \omega_k), \tag{1.237}$$

adică rata de absorbție este proporțională cu n_k pe cînd rata de emisie este proporțională cu $(n_k + 1)$, unde indicele k specifică vectorul de undă al fotonului, care participă la interacție, iar unitatea din expresia $(n_k + 1)$ descrie emisie spontană.

Spre deosebire de absorbție și emisia indusă, emisia spontană se produce în absența radiației, vectorul de undă al fotonului emis avînd o orientare arbitrară.

Pentru *timpul de viață radiativ* τ_R definit ca inversul ratei de tranziție, se obține expresia

$$\frac{1}{\tau_R} = A_{sr} = e^2 \omega_0^3 |D_{rs}|^2 / 3\pi \varepsilon_0 \hbar c^3 \tag{1.238}$$

unde A_{sr} este coeficientul lui Einstein pentru emisia spontană.

O altă posibilitate oferită de teoria cuantică o reprezintă calculul susceptibilității atomice. În acest scop, se trece de la ecuația de undă „mixtă"

$$(\hat{H}_E + \hat{H}_{DE}(t))\, \psi(t) = \mathrm{i}\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} \tag{1.239}$$

în care descrierea este de tip Schrödinger pentru partea atomică și de tip Heisenberg pentru partea radiativă, la ecuația de tip Schrödinger pentru întregul sistem, simetrică în partea atomică și radiativă

$$(\hat{H}_E + \hat{H}_R + \hat{H}_{DE})\, \Phi(t) = \mathrm{i}\hbar \frac{\partial \Phi(t)}{\partial t} \tag{1.240}$$

după regulile cunoscute, unde

$$\Phi(t) = \exp\left[-\frac{\mathrm{i}}{\hbar} \hat{H}_R(t)\right] \psi(t). \tag{1.241}$$

Dacă ne referim în continuare, la un sistem atomic cu două stări $|r\rangle$ şi $|s\rangle$, Ω fiind frecvenţa de tranziţie corespunzătoare, este utilă pentru descrierea interacţiei, introducerea *operatorilor de tranziţie* $\hat{\pi}^+$ şi $\hat{\pi}$ definiţi prin relaţiile

$$\hat{\pi}^+ = \hat{b}_s^+ \; \hat{b}_r = |s\rangle \langle r| \text{ (operatorul de excitare)} \tag{1.142}$$

respectiv

$$\hat{\pi} = \hat{b}_r^+ \; \hat{b}_s = |r\rangle\langle s| \text{ (operatorul de dezexcitare)} \tag{1.243}$$

astfel încît

$$\hat{\pi}^+\hat{\pi} = \hat{b}_s^+ \; \hat{b}_s \text{ şi } \hat{\pi}\hat{\pi}^+ = \hat{b}_r^+ \; \hat{b}_r. \tag{1.244}$$

Cu ajutorul acestor operatori hamiltonianul sistemului se scrie sub forma

$$\hat{H} = \hbar\Omega\hat{\pi}^+\hat{\pi} + \sum_k \hbar\omega_k\hat{a}_k^+ \; \hat{a}_k + \\ + \mathrm{i} \sum_k \hbar\mathcal{D}_k(\hat{a}_k - \hat{a}_k^+)(\pi^+ + \pi). \tag{1.245}$$

Expresia (1.245) se poate simplifica şi mai mult dacă se reţin în hamiltonianul de interacţie numai termenii care corespund proceselor de excitare-dezexcitare a atomului în tranziţiile $|r\rangle \rightleftarrows |s\rangle$ (tabelul 1.3), adică

$$\hat{H}_{DE} = \mathrm{i} \sum_k \hbar\mathcal{D}_k(\hat{\pi}^+\hat{a}_k - \hat{a}_k^+\hat{\pi}). \tag{1.246}$$

Pentru calculul dependenţei de frecvenţă a susceptibilităţii se consideră modelul unui atom plasat într-o cavitate închisă, astfel încît stările proprii $|z\rangle$ ale sistemului cuplat atom-radiaţie sînt mixturi ale stării atomice excitate şi modurile cavităţii.

Ca urmare, în loc de a se mai ataşa constante de timp de amortizare pentru stările atomice excitate ca în teoria semicuantică, se consideră interacţia radiaţiei incidente cu un număr mare de stări neamortizate, fiecare dintre acestea fiind o superpoziţie a stării atomice excitate cu un anumit mod al cavităţii. Un calcul detaliat conform acestei metode pentru calculul susceptibilităţii atomice este prezentat în lucrarea [86]. Se obţine expresia

$$\chi(\omega) = \frac{Ne^2\,|\mathbf{D}_{12}|^2}{3\,\varepsilon_0\hbar\,V}\left\{\frac{1}{\Omega - \omega - \sum_k \mathcal{D}_k^2/(\omega_k - \omega)} + \right. \\ \left. + \frac{1}{\Omega + \omega - \sum_k \mathcal{D}_k^2/(\omega_k + \omega)}\right\} \tag{1.247}$$

în care nu mai apare ca în teoria semicuantică parametrul fenomenologic γ_i.

O altă formă a expresiei (1.247) care pune în evidenţă caracterul lorentzian al liniei spectrale este următoarea

$$\chi(\omega) = \frac{Ne^2\,|\mathbf{D}_{12}|^2}{3\,\varepsilon_0\hbar V}\frac{1}{\Omega - \omega - \Delta(\omega) - \mathrm{i}\,\gamma(\omega)} + \\ + \frac{1}{\Omega + \omega - \Delta(-\omega) + \mathrm{i}\,\gamma(-\omega)}. \tag{1.248}$$

Se remarcă pe lîngă rezultatul semicuantic, apariţia unei deplasări $\Delta(\omega)$ a frecvenţei şi un parametru $\gamma(\omega)$, corespunzător parametrului fenomenologic γ (dependenţa de frecvenţă a lui $\gamma(\omega)$ determină o distorsionare slabă a liniei lorentziene).

Calculul cantităţii $\Delta(\omega)$ se reduce la evaluarea unei integrale divergente, dificultate înlăturată de Bethe printr-un procedeu de renormalizare a masei electronului care interacţionează cu cîmpul electromagnetic [85].

În ceea ce priveşte parmetrul $\gamma(\omega)$, se poate considera aproximativ $\gamma(\omega) \simeq \gamma(\Omega)$, astfel că $\tau_R = \dfrac{1}{2\gamma(\Omega)}$, rezultat cunoscut din teoria semicuantică.

Metoda poate fi extinsă pentru evaluarea susceptibilităţii atomilor cu mai multe nivele excitate, accesibile din starea fundamentală prin tranziţii de dipol electric (de exemplu, un gaz atomic).

1.12. Procesele de disipare şi fluctuaţiile

Pe lîngă tranziţiile care prezintă interes, în studiul interacţiei radiaţiei cu atomii trebuie luat în considerare şi efectul celorlalte sisteme cu care interacţionează atomii şi cîmpul de radiaţie, care constituie *rezervoarele sau termostatele*. Astfel atomii sînt influenţaţi de pompaj, vibraţiile reţelei, ciocnirile atomice, radiaţia incoerentă etc.

De asemenea, cîmpul de radiaţie este influenţat de centrii de împrăştiere, reflexia pe oglinzi în cazul cavităţilor optice rezonante şi alţi factori. Toate aceste sisteme au caracteristicile unor termostate.

Acţiunea termostatelor asupra atomilor şi cîmpului este aleatoare, determinînd procesele de disipare şi fluctuaţiile acestora, care se comportă astfel ca particule browniene, mediul de mişcare al acestora fiind constituit de către termostate.

Formalismele tipice pentru studiul proceselor de disipaţie şi fluctuaţiilor sînt cele ale ecuaţiilor Langevin, Fokker-Planck, precum şi cel al matricei densitate.

1.12.1. Ecuaţia master şi ecuaţia Fokker-Planck

Fie un sistem descris prin mai multe variabile aleatoare discrete reprezentate prin vectorul $\mathbf{m}$ (de exemplu, o particulă care se mişcă în reţeaua cristalină) şi $P(\mathbf{m}, t)$ probabilitatea ca la momentul t sistemul să fie în punctul $\mathbf{m}$. Ca urmare a tranziţiilor pe care sistemul poate să le sufere din punctul $\mathbf{m}$ în $\mathbf{m}'$ şi invers din $\mathbf{m}'$ în $\mathbf{m}$, se poate scrie ecuaţia generală

$$\frac{dP(\mathbf{m}, t)}{dt} = \sum_{\mathbf{m}'} w(\mathbf{m}, \mathbf{m}')\, P(\mathbf{m}', t) - P(\mathbf{m}, t) \sum_{\mathbf{m}'} w(\mathbf{m}', \mathbf{m}) \quad (1.249)$$

unde $w(\mathbf{m}, \mathbf{m}')$ este rata de tranziţie din punctul $\mathbf{m}'$ în $\mathbf{m}$, iar $w(\mathbf{m}', \mathbf{m})$ rata de tranziţie din $\mathbf{m}$ în $\mathbf{m}'$, însumarea făcîndu-se peste toate punctele $\mathbf{m}'$.

Ecuaţia (1.249) se numeşte *ecuaţia master*. Utilizarea sa este condiţionată de determinarea explicită a ratelor de tranziţie w, care face apel

la metodele fizicii statistice. Pentru regim staţionar, ecuaţia (1.249) exprimă *principiul echilibrului detaliat sau principiul microreversibilităţii.* Se observă că ecuaţia master este echivalentă cu un set de ecuaţii diferenţiale de ordinul întîi, care se pot reduce în anumite condiţii la un sistem de ecuaţii algebrice.

Dacă se înlocuie m (în cazul unei singure variabile) cu variabila continuă x, unde $m = x/a$ $(a \to 0)$, astfel încît

$$P(m, t)\,\Delta m = f(x, t)\,\Delta x \tag{1.250}$$

şi se notează cu τ durata tranziţiei $m \to m'$ (dintre două evenimente succesive) $(\Delta x/\Delta m = a)$, ecuaţia (1.249) se scrie după o serie de transformări sub forma

$$\frac{\mathrm{d}f(x,t)}{\mathrm{d}t} = \frac{1}{2}\,Q\,\frac{\mathrm{d}^2 f(x, t)}{\mathrm{d}x^2} \tag{1.251}$$

numită *ecuaţia difuziei* $(Q = a^2/\tau)$ şi reprezintă sub o formă simplă *ecuaţia Fokker-Planck*, Q fiind un coeficient de difuzie. Se observă că funcţia $f(x, t)$ are semnificaţia unei densităţi de probabilitate.

1.12.2. Ecuaţiile Langevin şi Fokker-Planck clasice

a) *Ecuaţiile Langevin.* Se ştie că mişcarea unei particule browniene este descrisă de ecuaţia

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\,\mathbf{v} = -\gamma\mathbf{v} + \mathbf{F}(t) + \mathbf{\Gamma}(t) \tag{1.252}$$

unde $\mathbf{F}_r = -\gamma\mathbf{v}$ este forţa de frecare care determină amortizarea mişcării, $\mathbf{F}(t)$ este o forţă externă dată, iar $\mathbf{\Gamma}(t)$ este o forţă aleatoare (forţa Langevin).

Forţele $\mathbf{F}_r$ şi $\mathbf{\Gamma}(t)$, care descriu efectul rezervorului asupra particulei, imprimă mărimii $\mathbf{v}$ un caracter aleator, avînd proprietăţi statistice care pot fi determinate dacă sînt cunoscute cele ale lui $\mathbf{\Gamma}(t)$.

Întrucît acţiunea forţei $\mathbf{\Gamma}(t)$ se exercită într-un interval care tinde la zero, aceasta poate fi reprezentată satisfăcător cu ajutorul funcţiei δ a lui Dirac

$$\Gamma(t) = \alpha \sum \delta(t - t_i)\,(\pm 1)_i \tag{1.253}$$

simbolul $(\pm 1)_i$ specificînd cele două direcţii posibile de mişcare în urma interacţiilor care au loc la momentele t_i.

Ecuaţia (1.252) poate fi generalizată sub forma

$$\frac{\mathrm{d}u_i}{\mathrm{d}t} = \sum_j F_{ij}(u)\,u_j + \Gamma_i(t) \tag{1.254}$$

unde $u = (u_1(\tau) \ldots u_n(\tau))$ reprezintă un set de mărimi fizice, iar F_{ij} sînt forţe care descriu atît procesele de relaxare, cît şi forţele externe. Ecuaţiile (1.252) şi (1.254) sînt cunoscute sub numele de *ecuaţii Langevin clasice.*

În numeroase probleme de interes, funcția de corelație a forței aleatoare $\Gamma(t)$ are forma

$$\langle \Gamma_i(t)\, \Gamma_j(t') \rangle = Q_{ij}\delta(t - t'). \qquad (1.255)$$

Procesele care au o astfel de proprietate se numesc *procese Markov* și sînt caracterizate de o „memorie" a rezervorului mult mai mică decît celelalte constante de timp ale sistemului. Mărimea Q_{ij} în ecuația (1.255) este o măsură a intensității fluctuațiilor, numită *tăria forței Langevin*.

Din calculul mediei statistice, pentru cazul mișcării browniene,

$$\langle u(t)\, u(t') \rangle = \frac{Q}{2\gamma} \exp\left[-\gamma(t - t')\right] \qquad (1.256)$$

se poate evalua factorul Q pentru care se obține

$$Q = 2\gamma\, kT/m^2 \qquad (1.257)$$

unde m este masa particulei browniene. Din ecuația (1.256) mai rezultă că variabila $u(t)$ își pierde memoria după un interval de timp $\Delta t = 1/\gamma$.

Relația (1.257) exprimă sub o formă simplă *teorema fluctuație-disipare*, și permite aprecierea mărimii fluctuațiilor pe baza mărimii disipării.

Prin generalizarea ecuației (1.256) se pot defini funcțiile de corelație de ordin superior ale variabilei $u(t)$

$$\langle u(t_n)\, u(t_{n-1}) \ldots u(t_1) \rangle$$

care implică calculul unor funcții de corelație de tipul ecuației (1.255) de același ordin $\langle \Gamma(\tau_n)\, \Gamma(\tau_{n-1}) \ldots \Gamma(\tau_1) \rangle$; calculul acestor medii presupune ipoteze adiționale asupra funcției $\Gamma(t)$, de exemplu, distribuția gaussiană a acesteia [80].

Trebuie observat, de asemenea, că introducerea forțelor de frecare $(-\gamma \mathbf{v})$ prezintă o serie de dificultăți legate de faptul că ecuațiile microscopice de mișcare sînt invariante la inversarea timpului, pe cînd forțele de frecare violează această invarianță.

În acest sens, se arată că pot fi cunoscute și utilizate valorile inițiale ale oscilatorilor rezervorului numai în sens statistic. Prin urmare, obținerea ecuațiilor Langevin depășește cadrul pur mecanic obișnuit.

b) *Ecuația Fokker-Planck*. În ecuația Langevin (1.252) variabila $\mathbf{v}$ are un caracter aleator imprimat de forța $\Gamma(t)$ astfel încît se poate vorbi de o funcție de distribuție a acestei variabile $f(v, t)$, care reprezintă probabilitatea ca la momentul t viteza particulei să fie cuprinsă în intervalul $\mathbf{v}$ și $\mathbf{v} + d\mathbf{v}$. Se poate arăta că funcția de distribuție $f(v, t)$ satisface ecuația

$$\frac{\partial}{\partial t} f = \left[\frac{\partial}{\partial v}\gamma v + \frac{Q}{2}\frac{\partial^2}{\partial v^2}\right] f \qquad (1.258)$$

numită *ecuația Fokker-Planck*. Factorul $\gamma \mathbf{v}$ se numește *coeficient de drift* iar factorul Q *coeficient de difuzie*. Soluția de regim staționar a ecuației (1.258) este, așa cum era de așteptat, funcția de distribuție maxwelliană a vitezelor.

Ecuaţia (1.258) poate fi generalizată pentru variabilele aleatoare u_i descrise de funcţia de distribuţie $f(u, t)$, în cazul proceselor Markov, sub forma [81]

$$\frac{\partial f(u, t)}{\partial t} = -\sum_i \frac{\partial}{\partial u_i}(G_i(u)\, f) + \frac{1}{2}\sum_{i,j}\frac{\partial^2(Q_{ij}(u)\, f)}{\partial u_i\, \partial u_j} \tag{1.259}$$

unde

$$G_i(u) = \lim_{t\to 0}\frac{1}{t}\langle u_i(t) - u_i(0)\rangle \tag{1.260}$$

şi

$$Q_{ij}(u) = \lim_{t\to 0}\frac{1}{t}\langle(u_i(t) - u_i(0))(u_j(t) - u_j(0)\rangle \tag{1.261}$$

sînt coeficienţi de drift, respectiv, de difuzie generalizaţi.

Stabilirea ecuaţiei Fokker-Planck pentru mişcarea browniană a unei particule descrisă de variabila q utilizează funcţia de distribuţie $P(q, t)$, care pentru traseul i (între două interacţii) are forma

$$P_i(q, t) = \delta(q - q_i(t)) \tag{1.262}$$

astfel incît

$$f(q, t) = \langle P(q, t)\rangle = \langle\delta(q - q(t))\rangle \tag{1.263}$$

unde $f dq$ reprezintă probabilitatea la care momentul t, particula să fie în intervalul dq în jurul lui q.

Pentru stabilirea ecuaţiei diferenţiale a funcţiei $f(q, t)$ se calculează expresia

$$\frac{\Delta f(q, t)}{\Delta t} = \frac{f(q, t + \Delta t) - f(q, t)}{\Delta t} \tag{1.264}$$

ţinîndu-se seama că variabila q satisface ecuaţia de mişcare Langevin.

Prin dezvoltarea în serie în jurul lui $\Delta q(t) = q(t + \Delta t) - q(t)$ şi limitarea la termenii de ordinul al doilea în Δq se obţine

$$\frac{\Delta f(q, t)}{\Delta t} = \frac{1}{\Delta t}\left\langle -\frac{d}{dq}\,\delta(q - q(t))\,\Delta q(t)\right\rangle + \frac{1}{2}\left\langle\frac{d^2}{dq^2}\,\delta\,(q - q(t))\,(\Delta q(t))^2\right\rangle. \tag{1.265}$$

Prin evaluarea celor doi termeni din membrul drept ţinînd seama de condiţia (1.255) şi trecere la limită, pentru $\Delta t \to 0$ rezultă *ecuaţia Fokker-Planck*

$$\frac{df}{dt} = \frac{d}{dq}(\gamma q f) + \frac{1}{2} Q\,\frac{d^2}{dq^2} f \tag{1.266}$$

de forma (1.258) sau (1.259).

Observaţii. 1. Se poate arăta că pentru o distribuţie gaussiană a forţelor Langevin, ecuaţia Fokker-Planck (1.266) este exactă evitîndu-se aproximaţiile introduse de dezvoltarea în serie a funcţiei $f(q, t)$.

2. Dacă se defineşte curentul de probabilitate

$$j = \gamma q f - \frac{1}{2} Q\,\frac{df}{dq},$$

ecuația Fokker-Planck (4.266) se reduce la ecuația de continuitate a funcției de distribuție

$$\dot{f} + \frac{d}{dq} j = 0.$$

1.12.3. Ecuațiile Langevin cuantice și ecuațiile matricei densitate

Tratarea cuantică a proceselor de disipare și a fluctuațiilor prezintă o serie de particularități în raport cu descrierea clasică a acestor fenomene, nefiind posibilă o simplă transpunere a ecuațiilor în limbaj cuantic.

În principiu, pot fi utilizate ecuațiile de mișcare Heisenberg pentru operatori, cărora li se atașează termeni care să ia în considerare procesele de disipare și fluctuațiile, în condițiile : valorile medii ale operatorilor trebuie să verifice ecuațiile clasice corespunzătoare; forțele aleatoare utilizate trebuie să verifice relațiile de comutare.

O altă posibilitate este oferită de ecuațiile de mișcare Heisenberg scrise pentru sistemul global, din care se elimină variabilele rezervorului astfel că apare posibilitatea descrierii proceselor de disipare și fluctuațiilor pentru subsistemul care prezintă interes.

a) *Ecuațiile Langevin cuantice. Procesele de disipare și fluctuațiile pentru cîmp.* Să arătăm mai întîi că nu este posibilă simpla translatare în limbaj cuantic a ecuațiilor clasice. Într-adevăr, expresiei clasice a cîmpului afectat de procesele de disipare

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \, e^{-\varkappa t - i\omega t} \qquad \left(\varkappa = \frac{\sigma}{2\varepsilon_0}\right) \tag{1.267}$$

îi corespund operatori de cîmp

$$\hat{a}^+(t) = \hat{a}^+(0) \, e^{-\varkappa t + i\omega t} \tag{1.268}$$

$$\hat{a}(t) = \hat{a}(0) \, e^{-\varkappa t - i\omega t} \tag{1.269}$$

a căror relație de comutare are forma

$$[\hat{a}(t), \hat{a}^+(t)] = e^{-2\varkappa t} \tag{1.270}$$

în contradicție cu relația de comutare $[\hat{a}, \hat{a}^+] = 1$, satisfăcută la orice moment de timp.

Acest neajuns poate fi înlăturat dacă pe lîngă procesele de disipare ale cîmpului sînt *luate în considerare și fluctuațiile* prin intermediul unor operatori care depind de coordonatele rezervorului, $\hat{F}(t)$. Ca urmare, operatorii $\hat{a}^+$ și $\hat{a}$ satisfac ecuațiile diferențiale următoare, ușor de stabilit pe baza expresiilor (1.268) și (1.269)

$$\dot{\hat{a}}^+ = (i\omega - \varkappa) \, \hat{a}^+ + \hat{F}^+(t) \tag{1.271}$$

$$\dot{\hat{a}} = (-i\omega - \varkappa) \, \hat{a} + \hat{F}(t). \tag{1.272}$$

Pentru ca ecuațiile (1.271) și (1.272) să conducă la soluții care satisfac relațiile de comutare, operatorii $\hat{F}^+(t)$ și $\hat{F}(t)$ trebuie să aibă următoarele proprietăți

$$\langle \hat{F}(t) \rangle = \langle \hat{F}^+(t) \rangle = 0 \tag{1.273}$$

$$\langle \hat{F}(t)\, \hat{F}(t') \rangle = \langle \hat{F}^+(t)\, \hat{F}^+(t') \rangle = 0 \tag{1.274}$$

$$\langle \hat{F}^+(t)\, \hat{F}(t') \rangle = 2\varkappa \bar{n}\, \delta(t - t') \tag{1.275}$$

$$\langle \hat{F}(t)\, \hat{F}^+(t') \rangle = 2\varkappa(\bar{n} + 1)\, \delta(t - t'). \tag{1.276}$$

În relațiile de mai sus medierea peste fluctuații înseamnă de fapt medierea peste variabilele rezervorului. Ecuațiile (1.275) și (1.276) evidențiază ipoteza caracterului markovian al proceselor studiate. Mărimea $\bar{n}$ reprezintă numărul mediu de fotoni ai modului la temperatura T_R a rezervorului.

De exemplu, hamiltonianul cuantic al sistemului cuplat cu un rezervor alcătuit dintr-un set infinit de oscilatori armonici, are forma

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_R + \hat{H}_I \tag{1.277}$$

unde

$$\hat{H}_0 = \hbar\omega\, \hat{a}^+\hat{a}$$

este hamiltonianul cîmpului,

$$\hat{H}_R = \sum_{\omega} \hbar\omega \hat{A}_{\omega}^+ \hat{A}_{\omega} \tag{1.278}$$

este hamiltonianul rezervorului, $\hat{A}_{\omega}^+$ și $\hat{A}_{\omega}$ fiind operatorii de creare și anihilare ai excitatorului rezervorului, iar

$$\hat{H}_I = \hbar \sum_{\omega} (\alpha_{\omega} \hat{a}^+ \hat{A}_{\omega} + \alpha_{\omega}^* \hat{A}_{\omega}^+ \hat{a}) \tag{1.279}$$

este hamiltonianul de interacție, α_{ω} fiind constante de cuplaj.

Din ecuațiile de mișcare Heisenberg pentru operatorii $\hat{a}^+$ și $\hat{A}^+$ se poate pune în evidență forța aleatoare $F^+(t)$

$$F^+(t) = \mathrm{i} \sum_{\omega} \alpha_{\omega}^* \hat{A}_{\omega}^+(0) \mathrm{e}^{i\omega t} \tag{1.280}$$

și proprietățile acesteia.

Ecuațiile (1.271) — (1.276) pot fi generalizate pentru mai multe moduri ale cîmpului.

Procesele de disipare și fluctuațiile pentru atomi. Numărul mediu de ocupare al stării $r = 1, 2$ pentru un sistem cu două nivele, la care ne referim, este dat de relația

$$n_r = \langle \psi | \hat{a}_r^+ \hat{a}_r | \psi \rangle. \tag{1.281}$$

Ca urmare, variația în timp a numerelor de ocupare a stărilor implicate se scrie sub forma

$$\frac{dn_2}{dt} = w_{21}n_1 - w_{12}n_2 \tag{1.282}$$

$$\frac{dn_1}{dt} = - w_{21}n_1 + w_{12}n_2 \tag{1.283}$$

w_{ij} fiind ratele de tranziție.

La ecuațiile de mai sus se adaugă ecuația valorilor medii ale operatorilor $\hat{b}_1^+\hat{b}_2$ și $\hat{b}_2^+\hat{b}_1$, care descriu momentul de dipol electric. Prin urmare se poate scrie

$$\frac{d\beta}{dt} = - i\omega\beta - \gamma_{12}\beta \tag{1.284}$$

unde

$$\beta = \langle\psi|\hat{b}_1^+\hat{b}_2|\psi\rangle \quad \text{și} \quad \beta^* = \langle\psi|\hat{b}_2^+\hat{b}_1|\psi\rangle \tag{1.285}$$

γ_{12} fiind un factor de amortizare a stării.

Ecuațiile pentru valorile medii (1.282), (1.283) și (1.284) pot fi scrise și pentru operatorii corespunzători.

Întrucît factorul de fază pentru operatorul de dipol electric $\hat{b}_2^+\hat{b}_1$ tinde exponențial spre zero, datorită interacției sistemului cu rezervorul, soluțiile ecuațiilor nu sînt consistente cu relațiile de comutare pentru fermioni.

Pentru a se restabili relațiile de comutare se adaugă în membrul drept al fiecăreia dintre ecuțiile (1.286) — (1.289) termenul Γ_{ij} care descrie forța aleatoare Langevin.

Se obține sistemul:

$$\frac{d}{dt}(\hat{b}_2^+\hat{b}_2) = w_{21}\hat{b}_1^+\hat{b}_1 - w_{12}\hat{b}_2^+\hat{b}_2 + \Gamma_{22}(t) \tag{1.286}$$

$$\frac{d}{dt}(\hat{b}_1^+\hat{b}_1) = - w_{21}\hat{b}_1^+\hat{b}_1 + w_{12}\hat{b}_2^+\hat{b}_2 + \Gamma_{11}(t) \tag{1.287}$$

$$\frac{d}{dt}(\hat{b}_2^+\hat{b}_1) = (i\omega_{21} - \gamma_{21})\hat{b}_2^+\hat{b}_1 + \Gamma_{21}(t) \tag{1.288}$$

$$\frac{d}{dt}(\hat{b}_1^+\hat{b}_2) = (- i\omega_{21} - \gamma_{12})\hat{b}_1^+\hat{b}_2 + \Gamma_{12}(t). \tag{1.289}$$

Ca și forțele aleatoare $F(t)$ pentru cîmp, forțele $\Gamma(t)$ se determină din condițiile:

— trebuie să aibă caracter Markov, adică să fie δ corelate:

$$\langle\Gamma_{ij}(t)\,\Gamma_{kl}(t')\rangle = G_{ij,kl}\delta(t' - t) \tag{1.290}$$

— soluțiile ecuațiilor pentru operatori trebuie să satisfacă regulile de comutare pentru fermioni, cerință echivalentă cu condiția :

$$\hat{b}_i^+ \hat{b}_j \hat{b}_k^+ \hat{b}_l = \hat{b}_i^+ \hat{b}_l \delta_{jk}. \tag{1.291}$$

Aceste condiții permit evaluarea univocă a factorilor $G_{ij,kl}$. Condiția suplimentară $\langle \Gamma_{ij}(t) \rangle = 0$ asigură trecerea inversă de la ecuațiile (1.286) — (1.289) la ecuațiile (1.282)—(1.284).

b) *Ecuațiile matricei densitate.* Întrucît ecuațiilor Langevin clasice le corespund ecuațiile Langevin cuantice se pune problema stabilirii unui corespondent cuantic pentru ecuația Fokker-Planck clasică.

Se poate arăta că rolul funcției de distribuție f care verifică ecuația Fokker-Planck este jucat de către operatorul densitate $\hat{\rho}$.

La baza acestei constatări stă analogia dintre relațiile de calcul ale valorilor medii corespunzătoare care au forma

$$\langle q^n \rangle = \int q^n f(q, t)\, \mathrm{d}q \leftrightarrow \langle \hat{\Omega} \rangle = \mathrm{Urm}\,(\hat{\Omega} \hat{\rho}). \tag{1.292}$$

Prin urmare, ecuația de mișcare a matricei densitate (1.159) trebuie aplicată sistemului cuplat cu rezervorul. În continuare se prezintă ecuația pentru *matricea densitate redusă* a sistemului, obținută prin eliminarea variabilelor rezervorului, folosind teoria perturbațiilor de ordinul al doilea. O astfel de ecuație va descrie procesele de disipare și fluctuațiile. De exemplu, în cazul laserilor se poate scrie

$$\frac{\mathrm{d}\hat{\rho}}{\mathrm{d}t} = \left(\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t}\right)_{coerent} + \left(\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t}\right)_{necoerent} \tag{1.293}$$

unde

$$\left(\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t}\right)_{coerent} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{H}_I, \hat{\rho}] \tag{1.294}$$

iar

$$\left(\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t}\right)_{ij} = \sum_{kl} R_{ijkl}\, \rho_{kl} \tag{1.295}$$

unde $\hat{H}_I$ este hamiltonianul de interacție, iar R_{ijkl} o constantă care descrie procesele de relaxare.

Observație. Ecuația (1.293) scrisă pentru o funcție de distribuție f clasică, poartă numele de *ecuația Fokker-Planck generalizată*

$$\frac{\mathrm{d}f}{\mathrm{d}t} = (L_{coerent} + L_{necoerent})\, f \tag{1.296}$$

coeficienții lui f fiind cunoscuți sub numele de *operatorii diferențiali Liouville generalizați.*

2. TEORIA COERENȚEI OPTICE

2.1. Introducere

Introdus în fizică pentru descrierea fenomenelor de interferență și difracție, conceptul de coerență optică este utilizat în prezent pentru descrierea generală a proprietăților statistice ale cîmpului electromagnetic. Lumina poate fi descrisă complet numai statistic astfel că s-a dezvoltat atît o teorie statistică clasică cît și o teorie statistică cuantică a coerenței.

Descrierea statistică a luminii este impusă de: modul de generare al acesteia de către un număr mare de radiatori independenți — atomii, modul de detecție al radiației sub forma unor medii statistice ale cîmpului incident, caracterul statistic al unor fenomene de propagare caracterizate de fluctuații, natura cuantică a proceselor de fotodetecție etc.

În studiul statistic al luminii se consideră mărimile de stare ale cîmpului electromagnetic $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ și $\mathbf{B}(\mathbf{r}, t)$ ca fiind funcții aleatoare de spațiu și timp și se utilizează reprezentarea lor sub forma unor semnale analitice complexe, desemnate prin funcția $V(\mathbf{r}, t)$ care poate fi oricare din componentele cîmpurilor $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ și $\mathbf{B}(\mathbf{r}, t)$, urmînd ca efectele de polarizare să fie analizate separat.

Se știe că pentru semnalul real asociat unei radiații policromatice

$$V^r(\mathbf{r}, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} v^r(\mathbf{r}, \nu)\, e^{-2\pi i \nu t}\, d\nu \tag{2.1}$$

se definește semnalul analitic

$$V(\mathbf{r}, t) = \int_{0}^{\infty} v(\mathbf{r}, \nu)\, e^{-2\pi i \nu t}\, d\nu \tag{2.2}$$

astfel încît

$$V^r(\mathbf{r}, t) = 2\,\mathrm{Re}\,[V(\mathbf{r}, t)]. \tag{2.3}$$

Întrucît V^r este real

$$v^r(\mathbf{r}, -\nu) = [v^r(\mathbf{r}, \nu)]^*, \tag{2.4}$$

adică toată informația este conținută în componentele cu frecvențe pozitive sau în cele cu frecvențe negative, redundanța putînd fi înlăturată prin stabilirea corespunzătoare a limitelor de integrare. Ținînd seama de definiția (2.2) se poate scrie

$$V(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2}\{V^r(\mathbf{r}, t) + i\mathscr{H}[V^r(\mathbf{r}, t)]\} \tag{2.5}$$

unde $\mathscr{H}[V^r(\mathbf{r}, t)]$ reprezintă transformata Hilbert a funcţiei $V^r(\mathbf{r}, t)$. ($\mathrm{Re}[V(\mathbf{r}, t)]$ şi $\mathrm{Im}\ [V(\mathbf{r}, t)]$ sînt transformate Hilbert reciproce).

Utilizarea semnalelor analitice, pe lîngă simplitate matematică, prezintă importanţa pentru trecerea de la descrierea clasică la descrierea cuantică a coerenţei corelat cu procesele de detecţie, după cum se va constata ulterior. Se poate arătă direct că semnalul analitic $V(\mathbf{r}, t)$ satisface ecuaţia de propagare a undelor

$$\Delta V - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 V}{\partial t^2} = 0. \tag{2.6}$$

Fie $p_1(V)$ densitatea de probabilitate asociată cu variabila aleatoare $V(\mathbf{r}, t)$, adică probabilitatea de a găsi în punctul $(\mathbf{r}, t)$ cîmpul avînd valoarea cuprinsă între V şi $V + \mathrm{d}V$. Valoarea medie a unei funcţii $f(V)$ va fi dată de relaţia

$$\langle f(V)\rangle = \int f(V) p_1(V)\, \mathrm{d}^2 V \tag{2.7}$$

integrala fiind efectuată peste planul V-complex.

De exemplu, intensitatea medie în punctul $(\mathbf{r}, t)$ este dată de relaţia

$$\langle I(\mathbf{r}, t)\rangle = \langle V^*(\mathbf{r}, t)\, V(\mathbf{r}, t)\rangle. \tag{2.8}$$

În cazul general al cîmpului electromagnetic $V_\mu(x, t)$ de polarizare μ, proprietăţiie statistice ale acestuia sînt descrise de *funcţia de corelaţie de ordinul* $N = m + n$ definită ca media statistică a funcţiei de cîmp $V_\mu(x, t)$ considerată în diferite puncte $x_j = (\mathbf{r}_j, t)$, pentru diferite polarizări, astfel

$$\Gamma^{(m,n)}_{\mu_1\mu_2\ldots\mu_{m+n}}(x_1, x_2, \ldots, x_{m+n}) = \left\langle \prod_{j=1}^{m} V^*_{\mu_j}(x_j) \prod_{k=m+1}^{n+m} V_{\mu_k}(x_k)\right\rangle. \tag{2.9}$$

Se va arăta că funcţiei de corelaţie clasice (2.9) îi corespunde funcţia de corelaţie cuantică

$$\Gamma^{(m,n)}_{\mathscr{N}, \mu_1\mu_2, \ldots, \mu_{m+n}}(x_1, \ldots, x_{m+n}) = \mathrm{Urm}\left\{\hat{\rho} \prod_{j=1}^{m} \hat{A}^{(-)}_{\mu_j}(x_j) \prod_{k=m+1}^{m+n} \hat{A}^{+}_{\mu_k}(x_k)\right\} \tag{2.10}$$

unde $\hat{\rho}$ este operatorul densitate, $\hat{A}^{(-)}_\mu$ şi $\hat{A}^{(+)}_\mu$ sînt operatorii de anihilare şi creare pentru fotonii, iar indicele $\mathscr{N}$ semnifică forma *normală de ordonare a operatorilor* (operatorii $\hat{A}^{(+)}$ sînt aşezaţi în dreapta operatorilor $\hat{A}^{-}$). Media statistică (2.7) se generalizează în acest caz astfel

$$\langle f(V_1, \ldots V_N)\rangle = \int f(V_1, V_2 \ldots V_N)\, p_N(V_1, V_2 \ldots V_N)\, \mathrm{d}V_N \tag{2.11}$$

$p_N(V_1, V_2 \ldots V_N)$ fiind densitatea de probabilitate condiţională a variabilelor statistice $V_1, V_2 \ldots V_N$.

În cazul cîmpurilor *staţionare*, funcţiile de corelaţie (2.9) şi (2.10) şi densitatea de probabilitate (2.11) sînt independente de translaţia în timp

a originii. În cazul cîmpurilor *ergodice*, media statistică poate fi înlocuită cu media temporală. Astfel pentru un cîmp staționar și ergodic se poate scrie

$$\Gamma^{(m,n)}(r_1, \ldots r_{m+n}; t_1 \ldots t_{m+n}) = \Gamma^{(m,n)}(r_1, r_2 \ldots r_{m+n}; \tau_2, \ldots \tau_{m+n}) =$$

$$= \lim_{T \to \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^{T} \prod_{j=1}^{m} V^*(r_j, t + \tau_j) \prod_{k=m+1}^{m+n} V(r_k, t + \tau_k) dt \quad (2.12)$$

unde $\tau_1 = 0$ și $\tau_j = t_j - t_1$, starea de polarizare μ_j pentru cîmpul în punctul x_j nemaifiind explicitată.

Utilizarea cît mai deplină a aparatului statisticii matematice pentru studiul coerenței implică definirea funcției de corelație spectrale $G^{(m,n)}(x_1, x_2 \ldots x_{m+n}; \nu)$

$$G^{(m,n)}(r_1, r_2 \ldots r_{m+n}; \nu) = \int_{-\infty}^{+\infty} \Gamma^{(m,n)}(r_1, r_2 \ldots r_{m+n}; t) \times \exp[-i2\pi(\nu, t)]\, dt \quad (2.13)$$

unde s-a notat

a) $\pi(\nu, t) = \sum_{j=1}^{m+n} \varepsilon_j \nu_j t_j, \quad \varepsilon_j = \begin{cases} +1, & (j = 1, 2 \ldots m) \\ -1 & (j = m+1 \ldots m+n); \end{cases}$

b) $t = (t_1, t_2 \ldots t_{m+n})$;

c) $\nu = (\nu_1, \nu_2 \ldots \nu_m; -\nu_{m+1}, \ldots -\nu_{m+n})$.

Prin urmare

$$G^{(m,n)}(r_1, r_2 \ldots r_{m+n}; \nu) = \left\langle \prod_{j=1}^{m} v^*(r_j, \nu_j) \prod_{k=m+1}^{m+n} v(r_k, \nu_k) \right\rangle \quad (2.14)$$

unde conform relației (2.2) semnalele $V(r_j, t_j)$ și $v(r_j, \nu_j)$ sînt corelate prin transformate Fourier reciproce.

Relația (2.13) mai este cunoscută și sub numele de *teorema Wiener-Hincin generalizată*.

De asemenea, se poate arăta că ecuația (2.6) implică următoarele ecuații „de propagare" pentru funcția de corelație $\Gamma^{(m,n)}$ și funcția de corelație spectrală $G^{(m,n)}$

$$\Box_j \Gamma^{(m,n)}(x_1, x_2, \ldots, x_{m+n}; t) = 0 \quad (2.15)$$

$$\left[\nabla_j^2 + \left(\frac{2\pi\nu_j}{c}\right)^2\right] G^{(m,n)}(x_1, x_2, \ldots x_{m+n}; \nu) = 0 \quad (2.16)$$

unde $j = 1, 2, \ldots m + n$,iar $\Box_j$ și ∇_j^2 sînt operatorii lui d'Alembert respectiv Laplace.

2.2. Teoria clasică a coerenței

2.2.1. Funcția de coerență de ordinul al doilea

a) *Funcția de coerență mutuală și gradul de coerență.* Funcția de corelație de ordinul (1,1) pentru cîmpurile staționare și ergodice

$$\Gamma^{(1,1)}(x_1, x_2; \tau) = \Gamma(x_1, x_2; \tau) = \lim_{T\to\infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^{T} V^*(x_1, t)\, V(x_2, t+\tau)\, dt \quad (2.17)$$

se mai numește *funcția de coerență mutuală* a cîmpurilor implicate și joacă un rol important în descrierea fenomenelor de interferență și difracție.

Efectele de coerență de ordin superior vor fi descrise prin funcții de corelație de același ordin, fiind utilizați pentru evidențiere fotodetectori pătratici ai căror curenți sînt corelați.

Fie două unde emise în punctele $P_1(\mathbf{r}_1)$ și $P_2(\mathbf{r}_2)$ ale unei surse (de exemplu, un dispozitiv de tip Young), care se suprapun într-un punct $Q(\mathbf{r})$ situat la distanțele $d_1 = ct_1$ și $d_2 = ct_2$ de punctele P_1, respectiv P_2. Intensitatea medie în punctul Q este dată de relația

$$\langle I(Q, t)\rangle = \langle [K_1 V(P_1, t - t_1) + K_2 V(P_2, t - t_2)]^* \times$$
$$\times [K_1 V(P_1, t - t_1) + K_2 V(P_2, t - t_2)]\rangle \quad (2.18)$$

unde K_1 și K_2 sînt conform teoriei difracției niște factori imaginari.

Expresia (2.18) se poate scrie sub forma:

$$\langle I(\mathbf{r}, t)\rangle = |K_1|^2 \langle I(\mathbf{r}_1, t - t_1)\rangle + |K_2|^2 \langle I(\mathbf{r}_2, t - t_2)\rangle +$$
$$2|K_1 K_2| \cdot \mathrm{Re}[\Gamma(\mathbf{r}_1, t - t_1; \mathbf{r}_2, t - t_2)] \quad (2.19)$$

unde

$$\Gamma(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2) = \langle V^*(\mathbf{r}_1, t_1)\, V(\mathbf{r}_2, t_2)\rangle \quad (2.20)$$

este funcția de coerență mutuală; pentru semnale staționare ergodice (2.20) se identifică cu (2.17).

Se numește *grad de coerență complex* mărimea normată

$$\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau) = \frac{\Gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1, \tau)}{\sqrt{\langle I(\mathbf{r}_1)\rangle \langle I(\mathbf{r}_2)\rangle}} \quad (2.21)$$

sau

$$\gamma_{12}(\tau) = \frac{\Gamma_{12}(\tau)}{[\Gamma_{11}(0)]^{1/2} [\Gamma_{22}(0)]^{1/2}} \quad (2.22)$$

unde

$$\Gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau) = \Gamma_{12}(\tau), \text{ iar}$$

$$\Gamma_{11}(0) = \langle I(\mathbf{r}_1)\rangle \text{ și } \Gamma_{22}(0) = \langle I(\mathbf{r}_2)\rangle \quad (2.23)$$

sînt *funcțiile de autocoerență* sau de *autocorelație* ale perturbațiilor și se obțin din funcția de coerență mutuală cînd punctele P_1 și P_2 coincid,

iar intervalul τ este egal cu zero. Ținînd seama de definiția (2.21) și de inegalitatea lui Schwarz rezultă

$$0 \leqslant |\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; \tau)| \leqslant 1, \tag{2.24}$$

cîmpul de radiație fiind *total coerent* dacă $|\gamma| = 1$ și *total necoerent* dacă $|\gamma| = 0$. Pentru sursele reale $|\gamma| \in (0, 1)$, adică cîmpul de radiație este *parțial coerent.*

În general, se poate scrie

$$\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau) = |\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau)| \exp [i\varphi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau)] \tag{2.25}$$

astfel încît se obține legea de interferență

$$\langle I(r)\rangle = 2I[1 + |\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau)| \cos \varphi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau)] \tag{2.26}$$

unde s-a notat

$$I = |K_i|^2\langle I(\mathbf{r}_i)\rangle \qquad (i = 1, 2).$$

Se observă că pentru o undă monocromatică

$$V(\mathbf{r}) = |V(\mathbf{r})| e^{-i\omega t} \tag{2.27}$$

$$\gamma(r_1, r_2, \tau) = e^{-i\omega\tau} \tag{2.28}$$

deci $|\gamma| = 1$ adică un astfel de cîmp este total coerent.

Dacă se definește, pentru caracterizarea coerenței, *vizibilitatea franjelor* astfel

$$\mathscr{V} = \frac{\langle I\rangle_{max} - \langle I\rangle_{min}}{\langle I\rangle_{max} + \langle I\rangle_{min}} \tag{2.29}$$

unde $\langle I\rangle_{max}$ și $\langle I\rangle_{min}$ corespund punctelor de maxim, respectiv de minim ale figurii de interferență se constată că

$$\mathscr{V} = |\gamma| \tag{2.30}$$

adică între gradul de coerență complex și vizibilitatea franjelor este o legătură directă.

De asemenea, se constată că funcția de coerență mutuală Γ satisface ecuația diferențială

$$\nabla_j^2 \Gamma_{12}(\tau) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \Gamma_{12}(\tau)}{\partial \tau^2} = 0 \tag{2.31}$$

de forma (2.15), unde indicele j specifică coordonatele punctelor $\mathbf{r}_1$ și $\mathbf{r}_2$ în care se consideră perturbația. Analog pentru funcția de coerență spectrală $G_{12}(\nu)$ se obține ecuația

$$\nabla_j^2 G_{12}(\nu) + k^2 G_{12}(\nu) = 0 \quad (j = 1, 2) \tag{2.32}$$

pentru orice ν, unde $k = \frac{2\pi\nu}{c}$. Ecuația (2.32) se poate obține și din (2.16) prin particularizare.

b) *Coerența temporală și spațială. Condiția de coerență totală de ordinul al doilea.* Corelația dintre cele două unde care interferă conform relației (2.19) poate fi considerată în două cazuri particulare: α) cînd

undele sînt emise în acelaşi punct al sursei la momente diferite; β) cînd undele sînt emise în puncte diferite ale sursei la un moment de timp dat. Corespunzător celor două situaţii se introduc conceptele de coerenţă temporală, respectiv spaţială.

Coerenţa temporală se poate studia urmărindu-se condiţiile de obţinere a franjelor de interferenţă într-un dispozitiv interferenţial de tip Michelson, analiza făcîndu-se fie în domeniul timp fie în domeniul frecvenţă. Dacă Δt este durata fenomenului de emisie a unor trenuri de undă ideale, se defineşte timpul de coerenţă $\tau_c = \Delta t$, astfel încît la limită

$$\tau_c = \frac{2\pi}{\Delta\omega}, \tag{2.33}$$

$\Delta\omega$ fiind lărgimea spectrală a radiaţiei. Dacă diferenţa de drum introdusă de interferometru $c\tau$ satisfac condiţia $c\tau < c\tau_c$, maximul de interferenţă de ordinul m pentru ω nu se suprapune peste maximul de ordinul $(m + 1)$ pentru $\omega' = \omega + \Delta\omega$, obţinîndu-se interferenţă. Cu alte cuvinte se admite că „fiecare foton interferă numai cu el însuşi" (Dirac) astfel că nu este posibilă localizarea sa în unul sau altul dintre braţele interferometrului.

Se numeşte *lungime de coerenţă* l_c mărimea $l_c = \tau_c c$. În cazul surselor reale pentru duratele şi lărgimile spectrale ale trenurilor de undă se adoptă definiţii care să ia în considerare atenuarea acestora în timpul emisiei şi existenţei efectului Doppler care afectează atomii.

Coerenţa spaţială se poate studia analizîndu-se fenomenul de interferenţă produs într-un dispozitiv Young, utilizîndu-se o sursă extinsă. Dacă se urmăreşte corelaţia care există la un moment dat între undele emise în puncte diferite ale sursei se obţine condiţia de interferenţă

$$ld < \lambda R$$

unde l este lărgimea sursei primare, d distanţa dintre sursele secundare ale dispozitivului Young, R distanţa de la sursa primară la sursele secundare, iar λ lungimea de undă a radiaţiei.

Corelat cu condiţia de mai sus se defineşte lărgimea de coerenţă

$$d_c = \frac{\lambda R}{l} \tag{2.34}$$

şi *aria de coerenţă*

$$A_c = \frac{R^2\lambda^2}{A_s} \tag{2.35}$$

unde A_s este aria sursei.

Dacă se ţine seama de expresia lungimii de coerenţă se poate defini şi *volumul de coerenţă*

$$V_c = A_c l_c = \frac{c}{\Delta\nu} \lambda \frac{R^2}{A_s} \tag{2.36}$$

astfel încît două surse secundare din volumul de coerenţă produc unde care interferă staţionar, în concordanţă deplină cu relaţiile de incertitudine ale lui Heisenberg. Gradul de coerenţă $\gamma_{12}(\tau)$ definit de relaţia

(2.21) ia în considerare atît coerența temporală, cît și coerența spațială a radiației. Corelația de principiu între coerența temporală și spațială a radiației este evidențiată și de ecuația (2.31) de propagare a funcției de coerență mutuală, acestea neputînd fi separate în cazul general.

Totuși, în multe cazuri practice, se poate exprima cu o bună aproximație $\gamma_{12}(\tau)$ ca un produs al gradelor de coerență temporală și spațială.

Condiția de coerență totală de ordinul al doilea

$$|\gamma(x_1, x_2)| = 1$$

implică egalitatea

$$|\Gamma(x_1, x_2)|^2 = \Gamma(x_1, x_1) \cdot \Gamma(x_2, x_2). \tag{2.37}$$

Se poate arăta că în acest caz

$$\Gamma(x_1, x_2) = V^*(x_1)\, V(x_2), \tag{2.38}$$

adică în cazul *coerenței totale* de ordinul al doilea, *funcția de coerență corespunzătoare se poate factoriza.* Proprietatea de factorizare poate fi considerată ca o definiție echivalentă a coerenței totale și se poate ilustra în mod asemănător pentru funcția de corelație $\Gamma^{(m, n)}$, care descrie coerența totală de ordin superior. Din relațiile (2.27) și (2.28) se observă că un astfel de cîmp total coerent trebuie să fie monocromatic. (Definiția cîmpului total coerent poate fi generalizată astfel încît acesta să nu fie în mod necesar monocromatic).

Observație. Pe lîngă tratarea funcțională a coerenței este posibilă și o descriere matriceală a acesteia bazată pe utilizarea cuantizării funcțiilor de cîmp în conformitate cu teorema eșantionării. Relația dintre tratările matriceală și funcțională a coerenței este analogă relației dintre mecanicile cuantice ondulatorie și matriceală.

2.2.2. Coerența cîmpurilor vectoriale

Teoria scalară a coerenței prezentată mai sus este valabilă în mod riguros numai pentru lumina polarizată, astfel încît se impune evidențierea unor particularități ale coerenței cîmpurilor vectoriale, deși teoria scalară descrie cu o aproximație suficient de bună proprietățile de coerență ale luminii.

În primul rînd vor fi analizate, în cele ce urmează, corelațiile existente între componentele cîmpului cu diferite polarizări urmînd ca în continuare să se dezvolte, pe scurt, formalismul tensorial al coerenței care permite studiul unitar al fenomenelor de coerență și polarizare.

a) *Matricea de coerență și proprietățile de polarizare.* Fie E_x și E_y componentele unei unde electromagnetice plane staționare, care se propagă în direcția z. Prin definiție matricea :

$$\mathscr{P}(\tau) = \left\langle \begin{bmatrix} E_x^*(t) \\ E_y^*(t) \end{bmatrix} \cdot [E(t+\tau), E_y(t+\tau)] \right\rangle =$$

$$= \begin{bmatrix} \langle E_x^*(t)\, E_x(t+\tau)\rangle & \langle E_x^*(t)\, E_y(t+\tau)\rangle \\ \langle E_y^*(t)\, E_x(t+\tau)\rangle & \langle E_y^*(t)\, E_y(t+\tau)\rangle \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathscr{P}_{xx}(\tau) & \mathscr{P}_{xy}(\tau) \\ \mathscr{P}_{yx}(\tau) & \mathscr{P}_{yy}(\tau) \end{bmatrix} \tag{2.39}$$

se numește *matricea de coerență* a undei. Analog se definește *matricea de coerență spectrală*

$$\mathcal{R}(\nu) = \lim_{T\to\infty} \frac{1}{2T} \left\langle \begin{bmatrix} e_x^*(\nu) \\ e_y^*(\nu) \end{bmatrix} \cdot [e_x(\nu), e_y(\nu)] \right\rangle \tag{2.40}$$

mărimile $E_{x,y}(t)$ și $e_{x,y}(\nu)$ fiind corelate prin transformate Fourier reciproce.

Se poate arăta că matricea de coerență spectrală poate fi exprimată funcție de matricele lui Pauli σ_i, coeficienții dezvoltării fiind parametrii Stokes spectrali s_i, sub forma:

$$\mathcal{R} = \frac{1}{2} \sum_{i=0}^{3} s_i \sigma_i \tag{2.41}$$

unde matricele lui Pauli au expresiile:

$$\sigma_0 = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}; \quad \sigma_1 = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix}; \quad \sigma_2 = \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix}; \quad \sigma_3 = \begin{bmatrix} 0 & i \\ -i & 0 \end{bmatrix} \tag{2.42}$$

iar parametrii Stokes spectrali sînt definiți prin matricea

$$\mathcal{R}(\nu) = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} s_0 + s_1 & s_2 + is_3 \\ s_2 - is_3 & s_0 - s_1 \end{bmatrix} \tag{2.43}$$

astfel încît

$$s_j = \mathrm{Urm}\,[\sigma_j \mathcal{R}]. \tag{2.44}$$

Analog se poate defini și matricea de coerență $\mathcal{P}(0)$ considerîndu-se parametrii Stokes $S_j(\tau)$, obținuți astfel

$$S_j(\tau) = \int_0^\infty s_j(\nu) \exp\,[-i\, 2\pi\nu\tau]\, d\nu. \tag{2.45}$$

Corelația dintre componentele x și y ale cîmpului electric poate fi exprimată cu ajutorul coeficientului γ_{xy} definit prin expresia

$$\gamma_{xy} = \frac{\mathcal{P}_{xy}}{[\mathcal{P}_{xx}\mathcal{P}_{yy}]^{1/2}} \tag{2.46}$$

astfel încît joacă rolul gradului de coerență $\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, 0)$. De exemplu, pentru lumina nepolarizată

$$|\gamma_{xy}| = 0 \tag{2.47}$$

și $\mathcal{P}_{xx} = \mathcal{P}_{yy}$, adică E_x și E_y sînt mutual necoerente. Matricea de coerență capătă în acest caz forma

$$\mathcal{P} = \frac{1}{2} I \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \tag{2.48}$$

În general, se poate arăta că matricea de coerență poate fi explicitată astfel

$$\mathcal{P} = \mathcal{P}_p + \mathcal{P}_n \tag{2.49}$$

unde $\mathscr{P}_p$ este o matrice de coerență pentru lumina complet polarizată, iar $\mathscr{P}_n$ o matrice de coerență pentru lumina nepolarizată. Ca urmare se definește gradul de polarizare P, prin relația

$$P = \frac{\mathrm{Urm}[\mathscr{P}_p]}{\mathrm{Urm}[\mathscr{P}_p] + \mathrm{Urm}[\mathscr{P}_n]} = \frac{\sqrt{(S_1^2 + S_2^2 + S_3^2)}}{S_0} \tag{2.50}$$

încît, în general, $0 \leqslant P \leqslant 1 (P = 1$ pentru lumina complet polarizată).

b) *Tensorii de corelație ai cîmpurilor vectoriale.* Componentele E_j și H_j ale cîmpului electromagnetic exprimate sub formă analitică pot fi utilizate pentru definirea *tensorilor de corelație* $\mathscr{E}, \mathscr{H}, \mathscr{M}, \mathscr{N}$, avînd componentele [78]

$$\mathscr{E}_{jk}(x_1, x_2) = \langle E_j^*(x_1)\, E_k(x_2)\rangle \; (j, k = 1, 2, 3) \tag{2.51}$$

$$\mathscr{H}_{jk}(x_1, x_2) = \langle H_j^*(x_1)\, H_k(x_2)\rangle \tag{2.52}$$

$$\mathscr{M}_{jk}(x_1, x_2) = \langle E_j^*(x_1)\, H_k(x_2)\rangle \tag{2.53}$$

$$\mathscr{N}_{jk}(x_1, x_2) = \langle H_j^*(x_1)\, E_k(x_2)\rangle. \tag{2.54}$$

Cu ajutorul celor pentru tensori (2.51)—(2.54) se definește matricea $\mathscr{K}$ avînd expresia

$$\mathscr{K}_{jk}(x_1, x_2) = \begin{bmatrix} \mathscr{E}_{jk}(x_1, x_2) & \mathscr{M}_{jk}(x_1, x_2) \\ \mathscr{N}_{jk}(x_1, x_2) & \mathscr{H}_{jk}(x_1, x_2) \end{bmatrix} \tag{2.55}$$

și tensorii

$$U_{jk}(x_1, x_2) = \mathrm{Urm}[\mathscr{K}_{jk}(x_1, x_2)] \tag{2.56}$$

$$S_{jk}(x_1, x_2) = \mathrm{Urm}[\hat{\sigma}\mathscr{K}_{jk}(x_1, x_2)] \tag{2.57}$$

unde

$$\hat{\sigma} = \begin{bmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix}. \tag{2.58}$$

Acești tensori asigură cadrul matematic necesar pentru descrierea unitară a fenomenelor de coerență și polarizare.

Se poate arăta că tensorii de corelație satisfac ecuațiile dinamice următoare, echivalente cu ecuațiile lui Maxwell în vid

$$\sum_{k,l} \varepsilon_{jkl} \frac{\partial}{\partial x_{1k}} \mathscr{K}_{lm}(x_1, x_2) - \frac{\hat{\sigma}}{c} \frac{\partial}{\partial t_1} \mathscr{K}_{jm}(x_1, x_2) = 0 \tag{2.59}$$

$$\sum_j \frac{\partial}{\partial x_{1j}} \mathscr{K}_{jm}(x_1, x_2) = 0 \tag{2.60}$$

și ecuații analoge privind variabilele x_{2k}.

Aceste ecuații constituie ecuațiile diferențiale fundamentale ale teoriei corelațiilor de ordinul al doilea ale cîmpului electromagnetic.

Ecuațiilor diferențiale de ordinul întîi de mai sus li se adaugă ecuația de undă (de ordinul al doilea) pentru tensorii de corelație

$$\nabla^2_{1,2}\mathscr{K}_{jm} = \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2_{1,2}}\mathscr{K}_{jm} \tag{2.61}$$

care rezultă din (2.59) și (2.60).
Cu ajutorul tensorilor $U_{jk}(x_1, x_2)$ și $S_{jk}(x_1, x_2)$ se pot defini:
scalarul

$$S(x_1, x_2) = \sum_{k=1}^{3} S_{kk}(x_1, x_2), \tag{2.62}$$

vectorul

$$S_i(x_1, x_2) = \sum_{j,k=1}^{3} \varepsilon_{ijk} S_{jk}(x_1, x_2) \tag{2.63}$$

și tensorul

$$T_{jk}(x_1, x_2) = U_{jk}(x_1, x_2) + U_{kj}(x_1, x_2) - \delta_{jk}\sum_{i=1}^{3} U_{ii}(x_1\ x_2) \tag{2.64}$$

care pot fi asociați cu densitatea de energie a cîmpului electromagnetic, densitatea de impuls în vid a cîmpului electromagnetic, respectiv, tensorul tensiune (stress) al cîmpului electromagnetic.

În sfîrșit, din ecuațiile dinamice (2.59) și (2.60) se obțin și legile de conservare tensoriale

$$\sum_{k,l} \varepsilon_{jkl}\frac{\partial}{\partial x_{1k}}\begin{pmatrix}U\\S\end{pmatrix}_{lm} + \frac{\hat{\sigma}}{c}\frac{\partial}{\partial t_1}\begin{pmatrix}U\\S\end{pmatrix}_{jm} = 0 \tag{2.65}$$

$$\sum_{j}\frac{\partial}{\partial x_{1j}}\begin{pmatrix}U\\S\end{pmatrix}_{jm} = 0. \tag{2.66}$$

Ecuații analoge rezultă și pentru tensorii de corelație spectrali care se obțin conform teoriei generale cu ajutorul transformatelor Fourier.

Ecuațiile diferențiale pentru tensorii de corelație pot fi utilizate la studiul general al legilor de interferență pentru coerența și polarizarea parțială. În mod asemănător pot fi definiți și tensorii de corelație de ordin superior, precum și tensorii de corelație cuantici.

2.2.3. Funcțiile de coerență de ordin superior

Generalizarea funcției de coerență de ordinul al doilea în conformitate cu relația de definiție (2.9) a funcției de corelație de ordinul $(m + n)$ reprezintă *funcția de coerență de ordinul* $(m + n)$

$$\Gamma^{(m,n)}(x_1, x_2, \ldots, x_{m+n}) =$$
$$= \langle V^*(x_1)\ldots V^*(x_m)V(x_{m+1})\ldots V(x_{m+n})\rangle \tag{2.67}$$

unde $x_j = (\mathbf{r}_j, t_j)$, iar $j = 1, 2, \ldots, m + n$.

Evident că o astfel de generalizare prezintă interes în măsura în care pot fi evidenţiate experimental efectele de coerenţă de ordin superior, teoria coerenţei fiind fondată pe mărimi fizice măsurabile experimental deşi cîmpul de radiaţie reprezintă prin excelenţă un sistem dinamic statistic.

Posibilitatea măsurării unor efecte de coerenţă de ordin superior a fost demonstrată de experimentul efectuat în 1956 de către Hanbury Brown şi Twiss care, pentru evaluarea funcţiei de coerenţă, au utilizat detectori fotoelectrici pentru măsurarea corelaţiilor fluctuaţiilor de intensitate în două puncte diferite şi nu a corelaţiilor dintre amplitudinile cîmpului cum se procedase în experimentele de interferenţă şi difracţie anterioare. Astfel, prin prelucrarea într-un corelator electronic a semnalelor detectate de doi fotomultiplicatori s-a obţinut funcţia de corelaţie a intensităţilor

$$\langle I_1(P_1, t+\tau)\, I_2(P_2, t)\rangle =$$

$$\langle E_1(P_1, t+\tau)\, E_1^*(P_1, t+\tau)\, E_2(P_2, t)\, E_2^*(P_2, t)\rangle. \tag{2.68}$$

Dacă fluctuaţiile intensităţii au expresia generală

$$\Delta I = I - \langle I\rangle \tag{2.69}$$

se poate arăta că

$$\langle \Delta I_1(P_1, t+\tau)\, \Delta I_2(P_2, t)\rangle = |\Gamma_{12}(\tau)|^2, \tag{2.70}$$

adică din măsurarea fluctuaţiilor intensităţilor rezultă posibilitatea calculului funcţiei de coerenţă. De remarcat că prin astfel de măsurări de corelaţie se pierde informaţia de fază a gradului de coerenţă, a cărei recuperare este posibilă pe baza transformatelor Hilbert.

Evident că măsurările în acest caz sînt limitele atît de imposibilitatea fotodetecţiei componentelor rapid variabile ale fluctuaţiilor, cît şi de zgomotul cuantic. Ca urmare a expresiei (2.8) acest experiment a pus pentru prima dată în evidenţă efectele de coerenţă de ordinul patru.

Studiile teoretice şi experimentale ulterioare au arătat existenţa a două tipuri de tehnici neconvenţionale pentru determinarea efectelor de coerenţă de ordin arbitrar şi anume: măsurări de corelaţie şi de coincidenţă fotoelectrică şi măsurarea statisticilor fotonilor fotodetectaţi (probabilităţilor de detecţie).

Dintre experimentele tipice privind tehnicile de corelaţie şi de coincidenţă, menţionăm pe lîngă cele al lui Hambury Brown şi Twiss, pe cele ale Twiss şi Little, Rebka şi Pound şi alţii. Astfel, funcţia de coerenţă de ordinul şase a fost măsurată în 1968 de către Davison şi Mandel.

Metoda utilizării statisticilor fotonilor fotodetectaţi pentru evaluarea funcţiilor de corelaţie a fost dezvoltată de Arecchi, Berné şi Burlamachi etc.

Statisticile fotonilor fotodetectaţi. Metoda statisticilor fotonilor fotodetectaţi constă în determinarea probabilităţii $p(x, T, t)$ de emisie a n fotoelectroni, adică de detecţie a n fotoni incidenţi pe un catod plan în

intervalul t şi $t+T$, astfel că mărimea $p(x, T, t)$ mai poate fi numită *distribuţia fotoelectronilor*. Fie $P(t, t+T)$ probabilitatea de emisie a unui electron în intervalul $(t, t+T)$ ca urmare a intensităţii aleatorii clasice $I(t)$ a luminii cvasimonocromatice incidente pe fotocatod

$$p(t,t+T) = \eta I(t)\,\mathrm{d}t \tag{2.71}$$

unde η este eficienţa cuantică a suprafeţei fotodetectoare.

Probabilitatea de emisie a n fotoelectroni în intervalul $(t, t+T)$ satisface ecuaţia diferenţială

$$\frac{\mathrm{d}p_n}{\mathrm{d}t} = \eta I(t)\,p_{n-1}(t) - \eta I(t)\,p_n(t) \tag{2.72}$$

care admite soluţii de forma

$$p_n(t) = \frac{1}{n!}\langle(\eta m)^n \exp(-\eta m)\rangle =$$

$$= \frac{1}{n!}\int_0^\infty (\eta m)^n \exp(-\eta m)\,P(m)\,\mathrm{d}m \tag{2.73}$$

unde mărimea

$$m = \int_t^{t+T} I(t')\,\mathrm{d}t' \tag{2.74}$$

se numeşte *nivelul probabilităţii* sau integrala intensităţii, $P(m)$ fiind distribuţia acestei mărimi. Ecuaţia (2.73) se numeşte *ecuaţia fotodetecţiei*.

Studiul statistic al proceselor de detecţie implică cunoaşterea unor mărimi statistice fundamentale, cum ar fi funcţiile caracteristice, momentele de diferite ordine etc.

Funcţia caracteristică $C^n(ix)$ este definită prin relaţia

$$C^{(n)}(ix) = \langle\exp(inx)\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} p(n, T, t)\exp(inx) \tag{2.75}$$

astfel că

$$p(n, T, x) = \frac{1}{2\pi}\int_0^{2\pi}\exp(-inx)\,C^{(n)}(ix)\,\mathrm{d}x. \tag{2.76}$$

Momentul de ordinul k este definit prin relaţia

$$\langle n^k\rangle = \frac{\mathrm{d}^k}{\mathrm{d}(ix)^k} C^{(n)}(ix)\Big|_{ix=0}. \tag{2.77}$$

De exemplu, rezultă

$$\langle n\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} p(n, T, t)\, n = \eta\langle m\rangle \tag{2.78}$$

$$\langle n^2\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} p(n, T, t)\, n^2 = \eta\langle m\rangle + \eta^2 \langle m^2\rangle \tag{2.79}$$

$$\langle n^3\rangle = \eta\langle m\rangle + 3\eta^2 \langle m^2\rangle + \eta^3 \langle m^3\rangle \ldots \tag{2.80}$$

. . . .

De asemenea, se obține pentru varianța lui n expresia

$$\langle(\Delta n)^2\rangle = \langle n^2\rangle - \langle n\rangle^2 = \langle n\rangle + \eta^2(\langle m^2\rangle - \langle m\rangle^2). \tag{2.81}$$

Un rol important îl joacă momentul factorial

$$\left\langle \frac{n!}{(n-k)!} \right\rangle = \eta^k \langle m^k\rangle \tag{2.82}$$

precum și *cumulanții* de diferite ordine definiți prin

$$\varkappa_j = \frac{\mathrm{d}^j}{\mathrm{d}(\mathrm{i}x)^j} \log C^{(n)}(\mathrm{i}x)\Big|_{\mathrm{i}x=0} \quad j = 1, 2, \ldots \tag{3.83}$$

Studiul statistic al radiației pe baza relațiilor de mai sus arată că distribuția acesteia pentru valori reduse ale cîmpului este de tip Poisson pe cînd pentru cîmpuri puternice semnalul fotodetectat poate fi considerat continuu.

Din ecuația (2.73) a fotodetecției se obține pentru distribuția intensității integrate expresia

$$P(m) = \exp(m) \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n p(n)\, \delta^{(n)}(m) \tag{2.84}$$

unde $\delta^{(n)}(m)$ este derivata de ordinul n a funcției δ a lui Dirac.

Pentru intervale de măsură T mult mai mici decît timpul de coerență, $m = IT$ și ecuația fotodetecției capătă forma

$$p(n,T) = p(n,T,t) = \int_0^{\infty} \frac{(\eta I T)^n}{n!} \exp(-\eta I T)\, P(I)\, \mathrm{d}I \tag{2.85}$$

care permite o interpretare fizică mai simplă a diferitelor cîmpuri de radiație.

Astfel, în cazul radiației laser $P(I) = \delta(I - \langle I\rangle)$, încît ecuația (2.85) devine

$$p(n, T) = \frac{\langle n\rangle^n}{n!} \exp(-\langle n\rangle) \tag{2.86}$$

care este de tip Poisson.

De asemenea, în cazul unui cîmp haotic, cum este cîmpul generat de sursele termice, care reprezintă un proces aleator gaussian, cu valoare medie nulă, se obține o distribuție

$$p(n, T) = \frac{\langle n\rangle^n}{1 + \langle n\rangle^{1+n}} \tag{2.87}$$

unde $\langle n\rangle = \eta\langle I\rangle\, T$, adică distribuția Bose-Einstein. O astfel de distribuție este valabilă și pentru dispozitivul laser aflat sub pragul de oscilație.

Dacă funcţia de distribuţie gaussiană pentru cîmpul haotic este complet determinată de funcţia de corelaţie de ordinul al doilea, în cazul cîmpurilor negaussiene sînt necesare şi funcţiile de corelaţie de ordin superior.

Într-adevăr, calculul momentelor de diferite ordine implică efectuarea unor integrale de tipul

$$\langle n_1 \ldots n_N \rangle = \eta_1 \, \eta_2 \ldots \eta_N \int_{t_1}^{t_1+T} \ldots \int_{t_N}^{t_N+T_N} \Gamma^{(N,N)}(x_1, x_2 \ldots x_N, x_N, \ldots x_1;$$

$$t'_1 \ldots t'_N, t'_N \ldots t'_1) \, \mathrm{d}t'_1 \ldots \mathrm{d}t'_N. \tag{2.88}$$

Măsurarea funcţiilor de coerenţă de ordin superior este posibilă în principiu prin tehnici de coincidenţă multiplă.

2.3. Teoria cuantică a coerenţei

2.3.1. Forma cuantică a funcţiei de coerenţă

Studiul riguros al coerenţei depăşeşte cadrul teoriei clasice a cîmpului de radiaţie. Tratarea cuantică a coerenţei implică utilizarea formalismelor cuantice ale matricei densitate şi cuantificării a doua dezvoltate în anexele 1 şi 2, analiza procesului de măsură (fotodetecţie) fiind fundamentală.

Analogul cuantic al funcţiei de coerenţă clasice (2.9) are forma generală (2.10) astfel că se impune stabilirea unei „corespondenţe" între cele două expresii menţionate.

În cele ce urmează se va stabili o astfel de corespondenţă pentru funcţia de coerenţă de ordinul al doilea, urmînd ca prin generalizare să se admită expresia generală (2.10).

Să considerăm cîmpul de radiaţie dintr-o incintă cubică de latura L, descris prin potenţialul vector $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$, avînd expresia :

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{L^{3/2}} \sum \frac{1}{\sqrt{2\omega_k}} [\hat{a}_k \boldsymbol{\varepsilon}_k e^{i(\mathbf{kr} - \omega_k t)} +$$

$$+ \hat{a}_k^+ \boldsymbol{\varepsilon}_k^* e^{-i(\mathbf{kr} - \omega_k t)}] = \mathbf{A}^{(+)}(\mathbf{r}, t) + \mathbf{A}^{(-)}(\mathbf{r}, t) \tag{2.89}$$

unde $k = \frac{2\pi}{L}(n_1, n_2, n_3)$, $n = 0, \pm 1, \pm 2, \ldots$, vectorii $\boldsymbol{\varepsilon}_k$ specificînd starea de polarizare a cîmpului transversal cuantificat din incintă.

Operatorilor de anihilare $\hat{a}_k$ şi creare $\hat{a}_k^+$ le corespund părţile $\mathbf{A}^{(+)}(\mathbf{r}, t)$ (cu frecvenţe pozitive), respectiv $\mathbf{A}^{(-)}(\mathbf{r}, t)$ (cu frecvenţe negative).

Aceeaşi dezvoltare este valabilă şi pentru intensitatea cîmpului electric cuantificat $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$, pe baza relaţiei

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\dot{\mathbf{A}}(\mathbf{r}, t)$$

astfel încît

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}^{(+)}(\mathbf{r}, t) + \mathbf{E}^{(-)}(\mathbf{r}, t), \tag{2.90}$$

potenţialul scalar fiind admis nul în regiunea de studiu.

Particularitățile statistice ale cîmpului vor fi descrise cu ajutorul operatorului densitate a cărui reprezentare diagonală are forma

$$\hat{\rho} = \sum_k p_k |\psi_k\rangle\langle\psi_k| \tag{2.91}$$

unde p_k sînt ponderile statistice ale stărilor $|\psi_k|\rangle$, iar $|\psi_k\rangle\langle\psi_k|$ operatorii de proiecție în stările $|\psi_k\rangle$. În consecință, valoarea medie a unui operator Ω are expresia

$$\langle\hat{\Omega}\rangle = \mathrm{Urm}\,(\hat{\rho}\hat{\Omega}). \tag{2.92}$$

Considerarea procesului de măsură în această analiză evidențiază existența unei *asimetrii* între componentele $\mathbf{E}^{(+)}(\mathbf{r}, t)$ și $\mathbf{E}^{(-)}(\mathbf{r}, t)$ ale cîmpului, partea de anihilare $\mathbf{E}^{(+)}(\mathbf{r}, t)$ jucînd un rol important în absorbție pe cînd partea de creare $\mathbf{E}^{(-)}(\mathbf{r}, t)$ intervenind în procesele de emisie stimulată.

Prin urmare detectorii *„prin absorbție”* corespund lui $\mathbf{E}^{(+)}(\mathbf{r}, t)$ pe cînd detectorii *„prin emisie stimulată”* numiți și *numărători de cuante*, corespund lui $\mathbf{E}^{(-)}(\mathbf{r}, t)$. Această diferență dispare la limita clasică, cînd energiile comparabile cu cuanta $\hbar\omega$ a cîmpului se neglijează, astfel încît fotodetectorii, cît și numărătorii de cuante dau același rezultat.

Un detector se numește *ideal* dacă are bandă largă și extensie spațială limitată încît la un moment dat t răspunde la cîmp într-un singur punct $\mathbf{r}$. Dacă ne referim la detectorii prin absorbție se poate calcula rata de tranziție din starea inițială $|\psi_i\rangle$ în starea finală $|\psi_f\rangle$ prin absorbția unui foton, ținîndu-se seama că starea finală nu este determinată

$$w = \sum_f w_{i-f} = \sum_f |\langle\psi_f|E^{(+)}(\mathbf{r}, t)|\psi_i\rangle|^2 =$$

$$= \sum_f \langle\psi_i|E^{(-)}(\mathbf{r}, t)|\psi_f\rangle\langle\psi_f|E^{(+)}(\mathbf{r}, t)|\psi_i\rangle = \tag{2.93}$$

$$= \langle\psi_i|E^{(-)}(\mathbf{r}, t)\, E^{(+)}(\mathbf{r}, t)|\psi_j\rangle;$$

s-a utilizat relația de închidere

$$\sum_f |\psi_f\rangle\langle\psi_f| = 1 \tag{2.94}$$

și relațiile de comutare între operatorii $\hat{a}_k$ și $\hat{a}_k^+$.

Ținînd seama că starea inițială $|\psi_k\rangle$ este descrisă de operatorul densitate (2.91) se obține pentru media statistică a ratei de tranziție w expresia

$$\langle w\rangle = \sum_k p_k w_k = \mathrm{Urm}\,[\hat{\rho}E^{(-)}(\mathbf{r}, t)\, E^{(+)}(\mathbf{r}, t)]. \tag{2.95}$$

Întrucît rata de tranziție $\langle w\rangle$ poate fi considerată o măsură a intensității medii în punctul (r, t) rezultă că expresia (2.95) determină funcția de coerență cuantică de ordinul al doilea sub forma

$$\Gamma^{(1,1)}(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}'t') = \mathrm{Urm}\,[\hat{\rho}E^{(-)}(\mathbf{r}, t)\, E^{(+)}(\mathbf{r}, t')] \tag{2.96}$$

astfel încît $\Gamma(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}, t)$ este intensitatea medie detectată. Prin generalizare se admite că funcția de coerență cuantică de ordin superior are expresia (2.10).

În cazul în care se consideră detectorul ca fiind constituit dintr-un singur atom cu un singur electron de valență studiul probabilității de tranziție din starea inițială a sistemului $|\varphi_i\psi_i\rangle$ și starea finală $|\varphi_f\psi_f\rangle$, unde

$|\varphi\rangle$ se referă la atom iar $|\psi\rangle$ se referă la cîmp, se face utilizîndu-se formalismul de interacție și metoda perturbațiilor.

Astfel, pentru lungimi de undă mai mari decît dimensiunile atomice se utilizează aproximația de dipol electric, încît hamiltonianul de interacție are forma

$$\hat{H}_I = -e\hat{x}(t)\,E(0, t). \tag{2.97}$$

Întrucît operatorul unitar de evoluție al sistemului supus cîmpului la $t = 0$, are forma

$$\hat{U}(t, 0) = 1 - \mathrm{i}\int_0^t \hat{H}_I(t')\hat{U}(t', 0)\,\mathrm{d}t'\,;\ \ (\hat{U}(0, 0) = 1), \tag{2.98}$$

rezultă pentru probabilitatea de tranziție din starea inițială în starea finală expresia

$$p_{|\varphi_i\psi_i\rangle \to |\varphi_f\psi_f\rangle} = |\langle\varphi_f\psi_f|\hat{U}(t, 0)|\varphi_i\psi_i\rangle|^2 \tag{2.99}$$

a cărei dependență de $E(0, t')$ arată rolul preponderent al componentei $E^{(+)}$ în absorbție întucît conține factorul $\exp[\mathrm{i}(\omega_{\varphi_i\varphi_f} - \omega_k)t']$ spre deosebire de $E^{(-)}$ care conține factorul $\exp[\mathrm{i}(\omega_{\varphi_i\varphi_f} + \omega_k)t']$ rapid variabil, în comparație cu timpul de răspuns al detectorului.

(Deoarece nu toți fotoelectronii sînt detectați se introduce un factor numit eficiența cuantică a detectorului.)

În mod asemănător se poate studia, într-un experiment prin coincidență, realizat prin considerarea a n detectori formați dintr-un singur atom, plasați în punctele $\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \ldots \mathbf{r}_n$ și expuși radiației la momentul $t = 0$, probabilitatea $p^{(n)}(t)$ ca fiecare detector să fi absorbit cîte un foton la momentul t.

În acest scop se utilizează aproximația de dipol electric în scrierea hamiltonianului de interacție pentru cei n atomi care nu interacționează mutual și metoda perturbațiilor. Soluția iterativă a lui Dyson [78]

$$\hat{U}(t, 0) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-\mathrm{i})^n}{n!} \int_0^t \mathrm{d}t_1 \ldots \int_0^t \mathrm{d}t_n \hat{T}[\hat{H}_I(t_1) \ldots \hat{H}_I(t_n)] \tag{2.100}$$

unde T este operatorul *de ordonare temporală a produsului*, conduce la expresia probabilității de tranziție

$$p^{(n)}(t) = \mathrm{ct.}\int_0^t \mathrm{d}t'_1 \ldots \int_0^t \mathrm{d}t'_n\ \mathrm{Urm}[\hat{\rho}E^{(-)}(x_1) \ldots E^{(-)}(x_n)\,E^{(+)}(x_{n+1}) \ldots$$

$$\ldots E^{(+)}(x_{2n})] \tag{2.101}$$

care pune în evidență efectele cuantice de ordin superior și faptul important că funcția de coerență este asociată cu un ***produs ordonat normal*** al operatorilor de cîmp, datorită rolului preponderent al proceselor de absorbție în detectorii de acest tip.

În mod analog, în cazul detectorilor prin emisie stimulată se poate arăta că pot fi măsurate funcții care corespund unui *produs anti-normal ordonat* al operatorilor de cîmp avînd forma

$$\text{Urm}[\hat{\rho}E^{(+)}(x_1)\ldots E^{(+)}(x_n)\,E^{(-)}(x_{n+1})\ldots E^{(-)}(x_{2n})]. \qquad (2.102)$$

În cazul acestor detectori rata de detecție este determinată atît de emisia stimulată, cît și de emisia spontană, ceea ce arată diferența dintre ratele de detecție prin emisie și absorbție fapt evidențiat teoretic de necomutativitatea operatorilor de cîmp de creare și anihilare.

(De exemplu, un detector prin absorbție așezat simetric într-un dispozitiv Young, x și y caracterizînd sursele secundare ale dispozitivului, măsoară mărimea $\text{Re}\{\text{Urm}\,[\hat{\rho}E^{(-)}(x)\,E^{(+)}(y)]\}$ pe cînd un detector prin emisie stimulată plasat în același loc măsoară mărimea $\text{Re}\{\text{Urm}[\hat{\rho}E^{(+)}(y)\,E^{(-)}(x)]\}$ diferența dintre cele două rezultate datorîndu-se emisiei spontane.)

Principalele proprietăți ale funcției de coerență cuantice

$$p^{(n,m)}(x_1,x_2\ldots x_n;\ x_{n+1}\ldots x_{n+m}) =$$
$$= \text{Urm}\,[\hat{\rho}E^{(-)}(x_1)\ldots E^{(-)}(x_n)E^{+}(x_{n+1})\ldots E^{+}(x_{n+m})] \qquad (2.103)$$

sînt următoarele: hermiticitatea, deoarece operatorii $E^{(-)}$ și $E^{(+)}$ sînt hermitic conjugați, invarianța spațio-temporală pentru cîmpurile statistic omogene și staționare, comutativitatea „locală" în cadrul aceluiași tip de operatori, precum și alte proprietăți analoge celor ale *funcțiilor Wightman*, care ca valori medii ale produsului operatorilor de cîmp în raport cu vectorii de stare ai vidului, reprezintă un tip special de funcții de coerență. Pentru un produs de operatori de cîmp ordonat normal $\Gamma^{(n,n)}_{\mathcal{N}(\text{vid})} = 0$, ca urmare a *condiției de stabilitate a vidului*

$$\hat{A}^{+}|0\rangle = 0, \qquad (2.104)$$

deci vidul fizic nu afectează măsurările de corelație de acest tip.

2.3.2. Cîmpuri coerente și stări coerente ale cîmpurilor

În cazul fenomenelor de coerență de ordinul al doilea, condiția de coerență completă

$$|\gamma^{(1,1)}_{\mathcal{N}}(x_1x_2)| = 1 \qquad (2.105)$$

este echivalentă ca și în cazul clasic cu condiția de factorizare

$$\Gamma^{(1,1)}_{\mathcal{N}}(x_1,x_2) = V^*(x_1)\,V(x_2) \qquad (2.106)$$

care este necesară și suficientă.

Prin analogie cu condiția (2.106) se poate vorbi de „coerență" completă de ordinul $2N$, dacă pentru orice $n,m \leqslant N$ (de obicei $m = n$) este satisfăcută condiția de factorizare

$$\Gamma^{(m,n)}_{\mathcal{N}}(x_1,x_2,\ldots,x_{m+n}) = \prod_{j=1}^{m} V^*(x_j) \prod_{k=m+1}^{m+n} V(x_k). \qquad (2.107)$$

Dacă din punct de vedere clasic cîmpurile complet coerente (fără zgomot) sînt descrise cu ajutorul funcției δ a lui Dirac, din punct de

vedere cuantic, cîmpurile complet coerente, care satisfac condiția (2.107), sînt descrise cu ajutorul *stărilor coerente ale cîmpului.*

Un exemplu de cîmp care posedă coerență completă de ordinul al doilea este un cîmp monocromatic, deși monocromaticitatea nu este o condiție necesară pentru coerența de ordinul al doilea.

Se poate arăta că cel mai general cîmp care posedă coerența de ordinul al doilea este cel în care este excitat un singur mod, nu neapărat monocromatic. Această observație conduce la o analogie interesantă între modurile coerente ale cîmpului de radiație și stările de superfluiditate și superconductivitate, unde se utilizează conceptul de condensare Bose-Einstein într-un singur mod.

a) *Stările coerente ale cîmpului.* În capitolul 1 s-au definit *stările Fock* sau stările *operatorului număr de particule* $|n>$ ca fiind stările proprii ale operatorului $\hat{n} = \hat{a}^+ \hat{a}$, conform ecuației

$$\hat{n}|n> = n|n>. \tag{2.108}$$

Aceste stări pot fi exprimate funcție de starea vidului $|0>$, astfel

$$|n> = \frac{1}{\sqrt{n!}} \hat{a}^{+(n)}|0> \tag{2.109}$$

și alcătuiesc un sistem ortonormat încît

$$\sum_{n=0}^{\infty} |n><n| = 1. \tag{2.110}$$

Utilizarea stărilor Fock pentru descrierea cuantică a coerenței este nesatisfăcătoare întrucît acestea nu conțin informația de fază privind cîmpurile și nu permit trecerea la limita clasică.

Aceste limitări sînt înlăturate dacă se utilizează formalismul stărilor coerente ale cîmpului, introdus de Schrödinger în 1927, dar dezvoltat și aplicat pentru studiul cuantic al coerenței de către Glauber (1963).

Prin definiție, *stările coerente* $|\alpha>$ sînt stările proprii ale operatorului de anihilare $\hat{a}$ conform ecuațiilor

$$\hat{a}|\alpha> = \alpha|\alpha> \tag{2.111}$$

$$<\alpha|\hat{a}^+ = <\alpha|\alpha^* \tag{2.112}$$

unde α este un număr complex ($\hat{a}$ nu este hermitic).

Se poate arăta că stările coerente se pot obține cu ajutorul *operatorului unitar „deplasare"*

$$\hat{U}(\alpha) = \exp(\alpha\hat{a}^+ - \alpha^*\hat{a}) \tag{2.113}$$

pornindu-se de la stările vidului, astfel

$$|\alpha\rangle = \hat{U}(\alpha)|0\rangle. \tag{2.114}$$

Dezvoltînd în serie Taylor operatorul $\hat{U}(\alpha)$ se obține

$$|\alpha> = \exp\left(-\frac{1}{2}|\alpha|^2\right) \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle, \tag{2.115}$$

adică exprimarea lui $|\alpha\rangle$ funcție de stările Fock ale cîmpului $|n\rangle$.

(Se observă $\hat{U}^{-1}(\alpha)\,\hat{a}\,\hat{U}(\alpha) = \hat{a} + \alpha$ și $\hat{U}^{-1}(\alpha)\hat{a}^{+}\hat{U}(\alpha) = \hat{a}^{+} + \alpha^{*}$, adică $\hat{U}(\alpha)$ acționează asupra operatorului $\hat{a}$ ca un operator de deplasare cu cantitatea complexă α.)

Stările coerente sînt *normate* $\langle\alpha|\alpha\rangle = 1$, dar *nu sînt ortogonale*, după cum rezultă din produsul

$$\langle\alpha|\beta\rangle = \exp\left(-\frac{1}{2}\,|\alpha|^2 - \frac{1}{2}|\beta|^2 + \alpha^*\beta\right), \tag{2.116}$$

ortogonalitatea fiind numai aproximativă, acoperirea lor devenind foarte mică, dacă $|\alpha - \beta| \gg 1$. Deși sînt mutual dependente, stările coerente alcătuiesc un sistem *supracomplet* de stări proprii întrucît o stare arbitrară poate fi exprimată funcție de stările coerente.

Condiția de *completitudine*

$$\frac{1}{\pi}\int|\alpha\rangle\langle\alpha|\mathrm{d}^2\alpha = \hat{1} \tag{2.117}$$

determină „rezoluția unitară" a sistemului supracomplet de stări proprii.

Dacă se introduc variabilele dinamice $\hat{p}$ și $\hat{q}$ ale cîmpului

$$\hat{p} = -\,\mathrm{i}\sqrt{\frac{\hbar\omega}{2}}\,(\hat{a} - \hat{a}^{+}) \text{ și } \hat{q} = \sqrt{\left(\frac{\hbar}{2\omega}\right)}\,(\hat{a} + \hat{a}^{+}) \tag{2.118}$$

și se calculează abaterile

$$\langle(\Delta\hat{q})^2\rangle = \langle\hat{q}^2\rangle - \langle\hat{q}\rangle^2 \text{ și } \langle(\Delta\hat{p})^2\rangle = \langle\hat{p}^2\rangle - \langle\hat{p}\rangle^2 \tag{2.119}$$

funcție de stările coerente ale cîmpului, se obține egalitatea

$$\langle(\Delta q)^2\rangle\,\langle(\Delta p)^2\rangle = \frac{\hbar^2}{4}\cdot \tag{2.120}$$

ceea ce evidențiază faptul că stările coerente se apropie cel mai mult de limita clasică (sînt stări cu incertitudine minimă).

Numărul de fotoni într-o stare coerentă $|\alpha\rangle$ poate lua orice valoare între 0 și ∞, după cum rezultă din calculul lui $\langle n\rangle$ ținînd seama de expresia (2.115)

$$\langle n\rangle = \langle\alpha|\,\hat{a}^{+}\hat{a}\,|\alpha\rangle = |\alpha|^2, \tag{2.121}$$

probabilitatea de a găsi n fotoni în starea $|\alpha\rangle$ fiind de tip Poisson :

$$|\langle n|\alpha\rangle|^2 = \frac{\langle n\rangle^n}{n!}\,\mathrm{e}^{-\langle n\rangle}. \tag{2.122}$$

Fie
$$\hat{q}(t) = \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega}}\,(\hat{a}\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega t} + \hat{a}^{+}\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega t}) \tag{2.123}$$

operatorul coordonată asociat oscilatorului armonic, în descrierea Heisenberg și $\alpha = |\alpha|\mathrm{e}^{\mathrm{i}\varphi}$ o valoare proprie a stării coerente $|\alpha\rangle$. Din calcul rezultă

$$\langle\alpha|\,\hat{q}\,(t)\,|\alpha\rangle = 2\sqrt{\frac{\hbar}{2\omega}}\,|\alpha|\,\cos\,(\omega t - \varphi) \tag{2.124}$$

adică valoarea medie a lui $\hat{q}(t)$ într-o stare coerentă este chiar coordonata oscilatorului armonic clasic.

Aceste rezultate arată că stările coerente sînt potrivite pentru ca utilizîndu-se descrierea cuantică să se treacă la limita clasică.

De remarcat că trecerea la limita clasică trebuie să fie posibilă pentru stări cu numere mari de fotoni, pentru numere mici de fotoni fiind posibilă numai descrierea cuantică. În același timp se arată că

$$\langle n|\hat{q}(t)|n\rangle = 0 \tag{2.125}$$

adică stările Fock nu sînt potrivite pentru descrierea limitei clasice.

Din calculul expresiei $\langle x|v\rangle$ rezultă că funcția de undă a unei stări coerente în reprezentarea x este constituită de pachetul de undă gaussian al stării fundamentale a oscilatorului armonic, avînd centrul deplasat cu partea reală q a lui $|\alpha\rangle$ și un factor de fază determinat de partea imaginară a lui $|\alpha\rangle$

$$\langle x|v\rangle = N\, e^{ipx-ipq/2} \exp\left[-\left(\frac{x-q}{2q_0}\right)^2\right] \tag{2.126}$$

unde

$$\alpha = q_0(\omega q + ip), \text{ deci } |\alpha\rangle \doteq |q, p\rangle \tag{2.127}$$

iar N este un factor de normare.

Reprezentarea vectorilor de stare $|v\rangle$ și a operatorilor $\hat{Q}$ funcție de stările coerente conduce la expresiile

$$|v\rangle = \frac{1}{\pi}\int |\alpha\rangle\langle\alpha|v\rangle\, d^2\alpha = \frac{1}{\pi}\int d^2\alpha \exp\left(-\frac{1}{2}|\alpha|^2\right) v(\alpha^*)|\alpha\rangle \tag{2.128}$$

respectiv

$$\hat{Q} = \frac{1}{\pi^2}\iint |\alpha\rangle\langle\alpha|\hat{Q}|\beta\rangle\langle\beta|\, d^2\alpha d^2\beta =$$

$$= \frac{1}{\pi^2}\int d^2\beta \int d^2\alpha \cdot \exp\left[-\frac{1}{2}|\beta|^2 + |\alpha|^2\right] \hat{Q}(\beta^*, \alpha)|\beta\rangle\langle\alpha|. \tag{2.129}$$

b) *Reprezentarea diagonală a matricei densitate.* Stările mixte ale cîmpului fiind descrise cu ajutorul matricei densitate, se pune problema exprimării acestei matrice cu ajutorul stărilor coerente.

Prin analogie cu expresia (2.129), operatorul densitate se poate exprima sub forma nediagonală

$$\hat{\rho} = \frac{1}{\pi^2}\iint |\alpha\rangle\langle\alpha|\hat{\rho}|\beta\rangle\langle\beta|\, d^2\alpha d^2\beta. \tag{2.130}$$

Problema care se pune este de a se stabili în ce condiții matricea densitate admite *reprezentarea diagonală*

$$\hat{\rho} = \int \varphi_{\mathcal{N}}(\alpha)|\alpha\rangle\langle\alpha|\, d^2\alpha \tag{2.131}$$

care constă dintr-o mixtură de operatori de proiecție $|\alpha\rangle\langle\alpha|$ pe stările coerente, $\varphi_{\mathcal{N}}(\alpha)$ fiind o *funcție de pondere* care satisface condiția de normare

$$\int \varphi_{\mathcal{N}}(\alpha)\, d^2\alpha = 1 \tag{2.132}$$

($\varphi_{\mathcal{N}}(\alpha)$ este o funcție reală de variabilă complexă α).

Un exemplu simplu de reprezentare diagonală îl constituie operatorul densitate pentru o stare coerentă pură

$$\hat{\rho} = |\alpha_0\rangle\langle\alpha_0|. \tag{2.133}$$

Reprezentarea (2.131) există dacă se poate evalua funcția de pondere $\varphi_{\mathcal{N}}(\alpha)$, prin rezolvarea ecuației integrale

$$\langle\alpha|\hat{\rho}|\alpha\rangle = \int \varphi_{\mathcal{N}}(\beta)|\langle\beta|\alpha\rangle|^2 d^2\beta \tag{2.134}$$

care este de forma unui produs de convoluție.

Funcția de pondere $\varphi_{\mathcal{N}}(\beta)$ nu poate fi interpretată ca o distribuție de probabilitate obișnuită deoarece nu este nenegativă și poate avea singularități mai puternice decît funcția δ ca urmare a faptului că nu poate fi măsurată direct (datorită necomutativității operatorilor de creare și anihilare). O astfel de funcție constituie o *ultradistribuție* sau o *funcție de cvasiprobabilitate*, fiind corelată cu distribuția Wiener [78].

Interpretînd funcția $\varphi_{\mathcal{N}}(\beta)$ ca o ultradistribuție, Sudarshan a arătat posibilitatea evaluării sale și reprezentării diagonale a oricărui operator densitate astfel încît reprezentarea diagonală corespunzătoare se mai numește *reprezentarea Glauber-Sudarshan*. (Glauber a studiat reprezentarea diagonală pentru cîmpul de radiație termic).

Forma diagonală a matricei densitate este deosebit de utilă pentru calculul valorilor medii ale operatorilor de cîmp ordonați normal. Astfel de valori medii intervin în evaluarea funcțiilor de corelație care descriu procesele de fotodetecție.

Ca urmare, valorile medii ale unor operatori de cîmp ordonați normal pot fi exprimate ca valori medii clasice, fiind evidențiată echivalența formală dintre cele două moduri de descriere a coerenței.

De exemplu, valoarea medie a operatorului $\hat{a}^{+r}\hat{a}^s$ se calculează astfel

$$\text{Urm}\,[\hat{\rho}\hat{a}^{+r}\hat{a}^s] = \int \varphi_{\mathcal{N}}(\alpha)\,\alpha^{*r}\alpha^s d^2\alpha. \tag{2.146}$$

O altă ultradistribuție care ne interesează este reprezentată de funcția $\langle\alpha|\hat{\rho}|\alpha\rangle$ care intervine în calculul valorii medii a produsului antinormal ordonat al operatorilor de cîmp. Într-adevăr

$$\text{Urm}\,[\hat{\rho}\hat{a}^s\hat{a}^{+r}] = \frac{1}{\pi}\int [\alpha^{+r}\alpha^s\langle\alpha|\hat{\rho}|\alpha\rangle\, d^2\alpha, \tag{2.147}$$

deci funcția $\frac{1}{\pi}\langle\alpha|\hat{\rho}|\alpha\rangle$ joacă același rol cu $\varphi_{\mathcal{N}}(\alpha)$, însă pentru produsul antinormal ordonat, astfel că o vom desemna prin $\varphi_{\mathcal{A}}(\alpha)$.

Se constată că între ultradistribuțiile $\varphi_{\mathcal{N}}(\alpha)$ și $\varphi_{\mathcal{A}}(\beta)$ există relația

$$\varphi_{\mathcal{A}}(\beta) = \frac{1}{\pi}\int \varphi_{\mathcal{N}}(\alpha) \exp(-|\beta - \alpha|^2)\, d^2\alpha. \tag{2.148}$$

c) *Corespondența dintre teoriile cuantică și clasică ale coerenței.* Corespondența dintre teoriile cuantică și clasică ale coerenței evidențiată tangențial în paragrafele anterioare se referă în primul rînd la echivalența funcțiilor de corelație cuantică (2.10) și clasică (2.9). Așa cum s-a mai menționat, această echivalență este în mare măsură formală, întrucît din punct de vedere fizic rezultatele cuantice diferă pentru cîmpuri de mică intensitate, de cele clasice. Pentru cîmpuri suficient de puternice însă, diferitele ordonări ale operatorilor nu joacă nici un rol, $\varphi_{\mathcal{N}} \to \varphi_{\mathcal{A}}$, astfel că există și o echivalență fizică a descrierilor clasică și cuantică ale coerenței. Alte aspecte ale corespondenței dintre cele două teorii se referă la statisticile de detecție.

Astfel, dacă se evaluează pe baza teoriei cuantice a detecției probabilitatea distribuției $p(n)$ a numărului de fotoni la un moment dat t într-un volum normat L^3, se obține

$$p(n) = \int_0^\infty P_{\mathcal{N}}(m) \frac{m^n}{n!} \exp(-m)\, dm, \tag{2.149}$$

expresie identică cu ecuația clasică a fotodetecției (2.73), cu $\eta = 1$. Prin urmare, proprietățile statistice ale fotoelectronilor reflectă proprietățile statistice ale fotonilor. Acest lucru se datorește faptului că măsurările de fotodetecție sînt corelate cu un produs ordonat normal al operatorilor cîmpului, încît fluctuațiile vidului nu dau contribuții la funcția de corelație „normală“ (pentru o astfel de ordonare valoarea medie a vidului este nulă).

O altă analogie formală este determinată de valoarea medie cuantică

$$\langle \hat{n}^2 \rangle = \langle \hat{n}^2 \rangle_{\mathcal{N}} + \langle \hat{n} \rangle_{\mathcal{N}} \tag{2.150}$$

identică cu relația (2.79).

Același lucru se poate spune despre identitatea momentelor factoriale pentru cele două tipuri de distribuții, clasică și cuantică.

Dintre diferențele care apar între teoriile cuantică și clasică ale coerenței menționăm ca esențială comportarea funcțiilor de pondere $\varphi_{\mathcal{N}}$ și $\varphi_{\mathcal{A}}$ ca ultradistribuții.

2.3.3. Particularități ale unor cîmpuri de radiație tipice

a) *Radiația termică* Se poate arăta că operatorul densitate pentru radiația termică de echilibru are forma [79]

$$\hat{\rho} = e^{-\beta \hat{H}}/\mathrm{Urm}\,(e^{-\beta \hat{H}}) \tag{2.151}$$

unde $\beta = 1/k_B T$, k_B fiind constanta lui Boltzmann, iar $\hat{H}$ hamiltonianul cîmpului de radiație

$$\hat{H} = \sum_k \omega_k \hat{a}_k^+ \hat{a}_k. \tag{2.152}$$

În raport cu vectorii proprii ai reprezentării Fock $|n\rangle$, se obține

$$\hat{\rho} = (1 - e^{-\beta\omega}) \sum_{n=0}^{\infty} (e^{-\beta\omega})^n |n\rangle\langle n| \tag{2.153}$$

astfel încît

$$\langle n\rangle = \text{Urm}\,(\hat{\rho}\hat{a}^+\hat{a}) = \frac{1}{e^{\beta\omega} - 1}, \tag{2.154}$$

în concordanță cu legea lui Planck a radiației termice. Punînd în evidență funcția de distribuție $p(m)$ în expresia lui $\hat{\rho}$ se poate scrie

$$\hat{\rho} = \sum_{m=0}^{\infty} p(m)|m\rangle\langle m| \tag{2.155}$$

unde distribuția

$$p(m) = \frac{1}{(1 + \langle n\rangle)} \left(\frac{\langle n\rangle}{1 + \langle n\rangle}\right)^m \tag{2.156}$$

este de tip Bose-Einstein.

Exprimînd operatorul densitate în raport cu stările coerente printr-o schimbare a bazei în expresia (2.155), se obține reprezentarea diagonală

$$\hat{\rho} = \frac{1}{\pi\langle n\rangle} \int \exp\left(-\frac{|\alpha|}{\langle n\rangle}\right) |\alpha\rangle\langle\alpha| d^2\alpha \tag{2.157}$$

unde funcția de pondere pentru un singur mod are forma :

$$\varphi_{\mathcal{N}}(\alpha) = \frac{1}{\pi\langle n\rangle} \exp\left(-\frac{\alpha^2}{\langle n\rangle}\right) \tag{2.158}$$

adică este o funcție gaussiană.

Rezultatele pot fi extinse pentru orice sursă de radiație haotică, condiția de echilibru termic nefiind absolut necesară. O astfel de sursă poate fi considerat și un tub de descărcare în gaze. Un cîmp haotic este definit prin maximul entropiei

$$S = -\,\text{Urm}\,[\hat{\rho}\log\hat{\rho}]. \tag{2.159}$$

Pe baza rezultatelor de mai sus se pot studia funcțiile de corelație pentru descrierea coerenței temporale a radiației termice [72], precum și statisticile de fotoni corespunzătoare [73].

Întrucît pentru distribuțiile gaussiene, momentele de ordin superior pot fi exprimate funcție de cele de ordinul al doilea, rezultă că această proprietate o au și funcțiile de coerență de ordin superior, pentru radiața termică.

b) *Radiația laser*. Obținută prin emisie stimulată, spre deosebire de radiația termică care este obținută prin emisie spontană, radiația laser are proprietăți statistice diferite de cele ale radiației termice. Studiul riguros al acestor proprietăți, implică utilizarea unor formalisme cum ar fi : ecuațiile Langevin pentru amplitudinile complexe, ecuația Fokker -Planck pentru distribuția de probabilitate sau ecuația master pentru matricea densitate. În cele ce urmează vor fi evidențiate unele aspecte statistice ale radiației laser ideale, urmînd ca în capitolele următoare să fie dezvoltate formalismele semicuantic și cuantic ale laserilor.

Mecanismul de producere al radiației laser, ca urmare a oscilațiilor coerente în raport cu cîmpul a atomilor mediului priviți ca dipoli care suferă tranziții, face ca acest tip de radiație să se afle, atunci cînd este excitat un singur mod, într-o stare coerentă descrisă de matricea densitate diagonală

$$\hat{\rho} = |\alpha\rangle \langle\alpha| \tag{2.160}$$

avînd funcția de pondere

$$\varphi_{\mathcal{N}}(\alpha) = \delta(\beta - \alpha). \tag{2.161}$$

Se știe că probabilitatea de a se găsi n fotoni într-o stare coerentă pentru un singur mod excitat este de tip Poisson. Rezultatele pot fi extinse pentru cazul excitării mai multor moduri, obținîndu-se o distribuție de probabilitate sub forma unei medii statistice peste diferitele distribuții Poisson [74]. Proprietățile statistice ale radiației laser sînt diferite pentru operarea sub prag a laserului în raport cu cele care caracterizează operarea în apropierea pragului sau peste pragul de oscilație.

Peste pragul de oscilație, proprietățile statistice ale radiației laserului real, rezultă din studiul superpoziției radiației coerente multimodale cu cea haotică multimodală. În acest caz, funcția de pondere $\varphi_{\mathcal{N}}$ de exemplu, rezultă ca o convoluție între o gaussiană și distribuția δ a lui Dirac. Metoda generală de studiu a superpoziției cîmpurilor coerente cu cele haotice se bazează pe utilizarea funcțiilor de corelație.

Observație. Studiul proprietăților de coerență ale cîmpurilor de radiație implică și analiza efectelor de interferență ale fasciculelor independente. Astfel, au fost observate bătăi între componentele necoerente ale unui dublet Zeeman [75], între fasciculele a doi laseri independenți [76] sau între două surse termice independente [77] utilizîndu-se tehnici de corelație. O analiză mai atentă însă a acestor experimente arată că afirmația lui Dirac privind „interferența unui foton numai cu el însuși", se aplică și în acest caz.

II. FUNDAMENTELE ELECTRONICII CUANTICE

3. TEORIA REZONATORILOR LASER

3.1. Considerații generale privind utilizarea structurilor deschise ca rezonatori laser

Dispozitivele cuantice de emisie și amplificare a radiației în regiunea optică și cea a microundelor a spectrului electromagnetic, denumite *laseri* respectiv *maseri*, își bazează funcționarea pe interacția a două sisteme fizice: cîmpul electromagnetic dintr-o cavitate optică rezonantă și mediul activ, situat în aceeași cavitate rezonantă, format din atomi, ioni, molecule etc. Prin excitarea mediului activ printr-un procedeu oarecare (ciocniri electronice, pompaj optic, transfer rezonant de excitație, injecție etc.) în mediul activ se acumulează o mare cantitate de energie electromagnetică, care în anumite condiții poate fi eliberată prin emisie stimulată sub forma radiației laser (maser). În cele ce urmează se vor face referiri în special la dispozitivele laser. Posibilitatea realizării dispozitivelor laser a fost arătată de Townes, în anul 1958. În anul 1960, Maiman în S.U.A și Prohorov în U.R.S.S., realizează primii laseri din lume. În anul 1962, la Institutul de fizică atomică, s-a realizat sub conducerea prof. I. Agârbiceanu, primul laser din R. S. România, care a fost astfel printre primele țări din lume în acest domeniu.

Condițiile de „amplificare a luminii prin emisie stimulată a radiației (LASER)" pentru un sistem atomic cu două nivele $|1\rangle$ și $|2\rangle$ avînd populațiile N_1 și N_2, pot fi stabilite sub o formă simplă, utilizîndu-se relațiile (1.40) — (1.42).

Astfel, din inegalitatea

$$(I_{si} + I_{sp}) > I_{ab} \text{ unde } I_{sp} \ll I_{st} \tag{3.1}$$

se obține condiția de *inversie de populație*

$$N_2 - N_1 > 0. \tag{3.2}$$

Această condiție este echivalentă, pe baza distribuției Boltzmann (1.32) a populațiilor, cu o stare avînd temperatura absolută negativă

$$T = \frac{1}{k} \frac{E_2 - E_1}{\ln \frac{N_1}{N_2}}. \tag{3.3}$$

În laseri, posibilitatea fizică a creării inversiei de populație este oferită de existența nivelelor atomice metastabile definite în § 1.4.

Condiția necesară de realizare a inversiei de populație nu este și suficientă pentru obținerea efectului laser, ca urmare a pierderilor care se produc în mediul de interacție. În consecință, se impune existența unui „cîștig'' al liniei spectrale emise mai ridicat decît pierderile, condiție care poate fi îndeplinită numai dacă inversia de populație depășește un anumit prag N_p, numit *prag de oscilație*, adică

$$N_2 - N_1 > N_p. \tag{3.4}$$

În scopul micșorării pierderilor mediul activ se situează într-o cavitate optică rezonantă. (Utilizarea cavităților optice rezonante de tip Fabry-Pérot a fost propusă de către Prohorov, Dicke, Schawlow și Townes în anul 1958.)

Cavitatea optică rezonantă folosită în construcția laserilor are dimensiuni mult mai mari decît lungimea de undă a radiației electromagnetice din cavitate, prin aceasta deosebindu-se de cavitățile rezonante folosite în dispozitivele cu microunde. Constructiv este o structură deschisă, fiind formată din două oglinzi de înaltă reflectivitate, așezate la distanță mare una de alta (vezi fig. 1.7). Radiația electromagnetică din interiorul cavității apare datorită dezexcitării spontane sau stimulate a mediului activ, care se manifestă astfel ca o sursă de energie. Cavitatea se numește pasivă în absența mediului activ și activă în prezența acestuia. O cavitate optică rezonantă poate suporta un număr mare de „moduri de oscilație'', longitudinale și transversale, care sînt configurații stabile ale cîmpului electromagnetic din cavitate (vezi § 3.2). Modurile longitudinale sînt specificate prin numărul de noduri în lungul axei cavității, pe cînd modurile transversale sînt specificate prin numărul de noduri în planul oglinzilor, adică într-un plan normal pe axa optică.

Pentru o cavitate optică rezonanță de lungime L, frecvențele corespunzătoare diferitelor moduri de oscilație longitudinale sînt determinate de condiția

$$L = q\left(\frac{\lambda_q}{2}\right) \tag{3.5}$$

deci

$$\nu_q = \frac{q \cdot c}{2L}. \tag{3.6}$$

Fiecărui mod de oscilație transversal îi corespund numeroase moduri longitudinale, date de numărul de noduri în lungul axei cavității.

Specificarea modurilor de oscilație se face cu ajutorul notației $TEM_{r,s,q}$. Indicii r, s, se referă la modurile transversale și indică numărul de noduri (schimbări de fază) ale cîmpului electric peste oglindă în direcțiile x și y. Indicele q se referă la modurile longitudinale și indică numărul de noduri pentru undele staționare formate în lungul axei rezonatorului (de ordinul $10^4 \div 10^7$).

Modurile longitudinale se deosebesc unul de altul numai prin frecvența de oscilație, pe cînd cele tansversale se deosebesc atît în privința frecvenței cît și în privința distribuției cîmpului într-un plan normal pe axa laserului.

Mediul activ furnizează energie prin emisie stimulată acelor moduri ale cavității care se află sub profilul liniei tranziției laser (fig. 3.1). Dacă energia furnizată diferitelor moduri depășește pierderile acestora (este

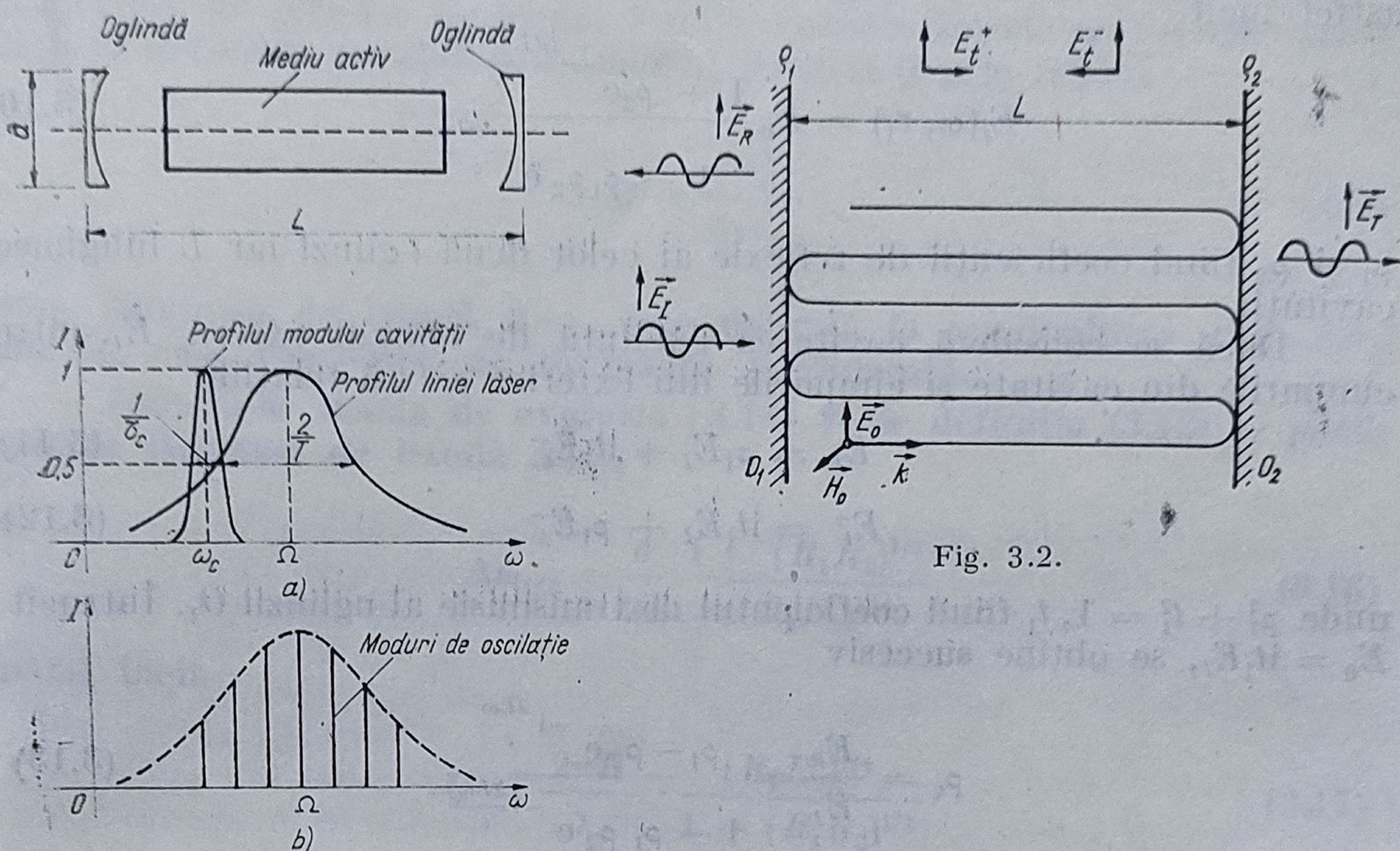


Fig. 3.1.

Fig. 3.2.

îndeplinită condiția de prag) laserul începe să oscileze pe aceste moduri, între care apar procese competitive.

Puterea laser utilă este extrasă din cavitate prin oglinzile rezonatorului (care au o transmisivitate de cîteva procente) și reprezintă „pierderi" pentru funcționarea peste prag a dispozitivului. Prin urmare, oglinzile rezonatorului au și rolul de cuplaj cu exteriorul a energiei laser.

Dacă ne referim la cavitatea rezonantă pasivă din figura 3.2, formată din oglinzile O_1 și O_2 și definim coeficientul de reflexie

$$\rho_e = \frac{E_R}{E_I}, \tag{3.7}$$

adică prin raportul dintre intensitatea cîmpului reflectat E_R către intensitatea cîmpului incident E_I, se pot evalua, la rezonanță, cîmpurile totale care se propagă în cavitate, în cele două sensuri, pentru o schimbare de fază φ arbitrară, E_t^+ și E_t^- și cîmpul total E_t

$$E_t^+(\omega,\ z_1) = E_0(1 + \rho_1\rho_2\,e^{-i\varphi} + (\rho_1\rho_2)^2\,e^{-2i\varphi} + \dots)$$

$$= \frac{E_0(z_1)}{1 - \rho_1\rho_2\,e^{\frac{-i2L\omega}{c}}}\left(\varphi = \frac{2L\,\omega}{c}\right) \tag{3.8}$$

respectiv

$$E_t^-(\omega, z_1), = \rho_2 E_t^+(\omega, z_1)\, e^{\frac{2i(L - z_1)\omega}{c}} \tag{3.9}$$

astfel încît

$$E_t(\omega, z_1) = E_0 \frac{1 + \rho_2 e^{\frac{-2i(L - z_1)\omega}{c}}}{1 - \rho_1 \rho_2 e^{\frac{-2iL\omega}{c}}} \tag{3.10}$$

ρ_1 și ρ_2 fiind coeficienții de reflexie ai celor două oglinzi iar L lungimea cavității.

Dacă se consideră cavitatea excitată de cîmpul extern E_I, între cîmpurile din cavitate și cîmpurile din exterior există relațiile

$$E_R = \rho_1 E_I + it_1 E_t^- \tag{3.11}$$

$$E_t^+ = it_1 E_I + \rho_1 E_t^- \tag{3.12}$$

unde $\rho_1^2 + t_1^2 = 1$, t_1 fiind coeficientul de transmisie al oglinzii O_1. Întrucît $E_0 = it_1 E_I$, se obține succesiv

$$\rho_e = \frac{E_R}{E_I} = \frac{\rho_1 - \rho_2 e^{-i\frac{2L\omega}{c}}}{1 - \rho_1 \rho_2 e^{-i\frac{2L\omega}{c}}} \tag{3.13}$$

$$T = 1 - \rho_e \rho_e^* = \frac{(1 - R_1)(1 - R_2)}{[1 - (R_1R_2)^{1/2}]^2 + 4(R_1R_2)\sin^{1/2}\left(\frac{\omega}{c}\right) L} \tag{3.14}$$

unde $R_{1,2} = \rho_{1,2}^2$ sînt reflectivitățile oglinzilor iar T transmitanța cavității.

Dependența transmitanței funcție de unghiul $\theta = \frac{\omega}{c} L$ este prezentată în figura 3.3.

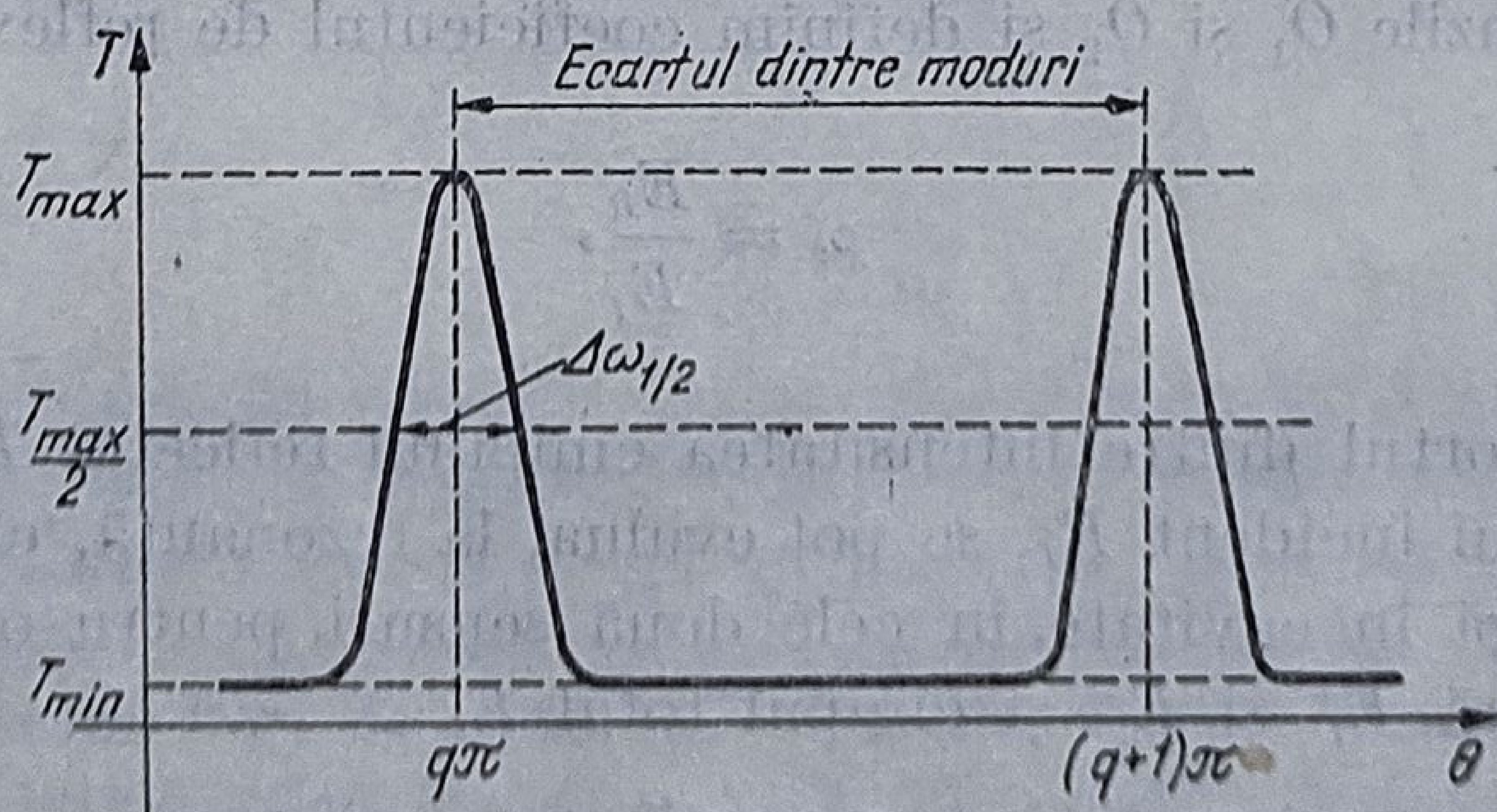


Fig. 3.3

Se observă că la rezonanță puterea transmisă este maximă (Pentru $R_1 = R_2$, $T = 1$; deci, în acest caz la rezonanță, toată puterea este transmisă de cavitate).

Întrucît reflectivitatea oglinzilor este ridicată ($R_1 = R_2 \simeq 0{,}99$), rezultă că în interiorul cavității energia trebuie să fie foarte mare, pentru ca puterea emergentă în aceste condiții să fie egală cu puterea incidentă. Prin urmare, în cavitate se stochează energia de la sursă, ca urmare a proceselor de reflexie multiplă. Pentru caracterizarea selectivității cavității se definește *factorul de calitate* al acesteia Q prin relația

$$Q = \frac{\omega_0}{\Delta\omega_{1/2}} \tag{3.15}$$

unde lărgimea de bandă $\Delta\omega_{1/2}$ este definită la semiînălțime (fig. 3.3), iar ω_0 este frecvența de rezonanță considerată.

Ținîndu-se seama de expresia (3.14) și de definiția (3.15) se poate calcula lărgimea de bandă $\Delta\omega_{1/2}$:

$$\Delta\omega_{1/2} = \frac{c}{2L}\,\frac{1-(R_1R_2)^{1/2}}{\pi(R_1R_2)^{1/4}} \tag{3.16}$$

astfel încît

$$Q = \frac{2\pi L}{\lambda_0}\cdot\frac{(R_1R_2)^{1/4}}{1-(R_1R_2)^{1/2}}. \tag{3.17}$$

La frecvențe optice $Q \simeq 10^8 \div 10^9$ deci are o valoare foarte mare ($\Delta\omega_{1/2}$ fiind de ordinul sutelor de kHz). Proprietățile „de filtrare“ ale cavității mai pot fi descrise cu ajutorul unei alte mărimi, numită *finețe* definită prin relația:

$$F = \frac{c}{2L}\cdot\frac{1}{\Delta\omega_{1/2}}, \tag{3.18}$$

adică prin raportul dintre ecartul dintre moduri și lărgimea de bandă $\Delta\omega_{1/2}$ (F este de ordinul sutelor).

Alte definiții echivalente ale factorului de calitate Q, utilizate în calcule sînt următoarele:

$$Q = 2\pi\,\frac{\textit{energia stocată în sistem la rezonanță}}{\textit{pierderea de energie într-o perioadă}} \tag{3.19}$$

sau

$$Q = \omega_0\,\frac{\textit{energia stocată în sistem la rezonanță}}{\textit{pierderea de putere medie}}. \tag{3.20}$$

O altă caracteristică importantă a cavității rezonante o reprezintă timpul de viață al fotonului în cavitate τ_c.

Pentru a se evalua acest timp se consideră un ansamblu de fotoni n care se propagă în cavitatea din fig. 3.2. Întrucît pentru un parcurs

dus — întors prin cavitate numărul de fotoni n scade la valoarea $R_1 R_2 n$, rezultă pentru rata de variaţie a lui n expresia

$$\frac{dn}{dt} = -\frac{1 - R_1 R_2}{2L/c} n. \tag{3.21}$$

Ecuaţia diferenţială (3.21) admite soluţia

$$n(t) = n_0 e^{-\frac{t}{\tau_c}} \tag{3.22}$$

unde

$$\tau_c = \frac{2L/c}{1 - R_1 R_2} \tag{3.23}$$

este timpul de viaţă al fotonilor în cavitate, n_0 fiind numărul iniţial de fotoni.

Ţinînd seama de definiţia (3.20) a factorului de calitate

$$Q = \omega_0 \frac{E}{-dE/dt} \tag{3.24}$$

unde E este energia stocată la rezonanţă se obţine prin integrare

$$E(t) = E_0 e^{-\frac{t\omega_0}{Q}} \tag{3.25}$$

deci

$$\tau_c = \frac{Q}{\omega_0} \quad \text{sau} \quad \Delta\omega_{1/2}\, \tau_c = 1, \tag{3.26}$$

relaţii care stabilesc legătura dintre timpul de viaţă al fotonului şi factorul de calitate al rezonatorului.

3.2. Distribuţia modală a cîmpului într-un rezonator optic

În teoria electromagnetică a rezonatorilor optici, se utilizează pentru calculul distribuţiei modale a cîmpului de radiaţie integrala Kirchhoff-Fresnel din teoria scalară a difracţiei şi principiul lui Huygens, datorită dificultăţilor care apar în rezolvarea directă a ecuaţiilor lui Maxwell, cu condiţii la limită corespunzătoare, ca în microunde, ca urmare a numărului mare de moduri de oscilaţie ale cavităţii optice, avînd dimensiuni mult mai mari decît lungimea de undă a radiaţiei.

În cele ce urmează ne vom referi la o cavitate optică pasivă, confocală, fomată din două oglinzi sferice, pătrate, de latură $2a$, apertura, raza de curbură R şi distanţa dintre oglinzi L fiind mult mai mari decît λ (fig. 3.4). Teoria electromagnetică dezvoltată de Li, Fox, Boyd şi Gordon permite determinarea condiţiei generale de rezonanţă, calculul distribuţiei cîmpului optic în interiorul şi în afara cavităţii precum şi stabilirea unor expresii matematice pentru factorul de calitate al modurilor de oscilaţie.

Cîmpul din cavitate aproximativ transversal este presupus liniar polarizat în direcţia y. Datorită pierderilor mici ale cavităţii, radiaţia parcurge de un mare număr de ori distanţa dintre oglinzi prin reflexii

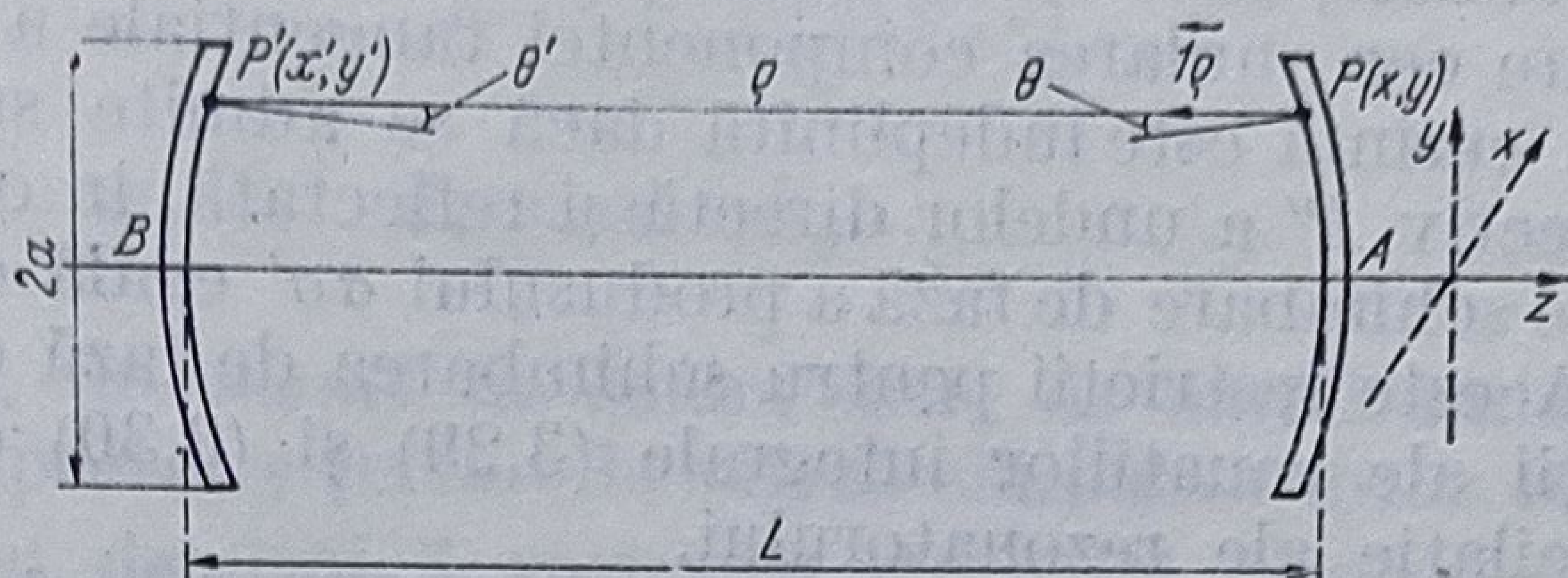


Fig. 3.4

succesive pe acestea, distribuţiile cîmpului pe cele două oglinzi fiind E_A şi E_B. Cîmpul la o oglindă se poate exprima funcţie de cîmpul la cealaltă oglindă cu ajutorul ecuaţiei integrale Kirchhoff-Fresnel a difracţiei. Funcţiile proprii ale acestei ecuaţii vor determina modurile de oscilaţie ale cavităţii, iar valorile proprii corespunzătoare vor conduce la condiţia de rezonanţă.

Prin urmare, cîmpul $E(x, y)$ în punctul $P(x, y)$ de pe oglinda A, se va obţine prin însumarea contribuţiilor surselor constituite de toate punctele $P'(x', y')$ de pe oglinda B, conform ecuaţiei

$$E(x, y) = \int_{S'} \frac{ik(1 + \cos\theta')}{4\pi\rho} e^{-ik\rho} E'(x', y')\, dS' \tag{3.27}$$

unde S' este suprafaţa oglinzii B, ρ raza vectoare dintre punctele P şi P', iar θ' unghiul format de direcţia vectorului $\boldsymbol{\rho}$ cu normala la suprafaţa oglinzii B în punctul P'.

În mod analog se poate scrie expresia cîmpului în punctele P' ale oglinzii B

$$E'(x', y') = \int_{S} \frac{ik(1 + \cos\theta)}{4\pi\rho} e^{-ik\rho} E(x, y)\, dS \tag{3.28}$$

unde S şi θ au semnificaţii asemănătoare lui S' şi θ'.

Dacă, la regim staţionar, mărimile $E(x, y)$ şi $E'(x', y')$ reprezintă cîmpul aceluiaşi mod de oscilaţie, care se reproduce peste oglinzile cavităţii ca urmare a reflexiilor succesive, atunci acestea trebuie să verifice ecuaţiile cuplate cu valori proprii şi funcţii proprii

$$\sigma E(x, y) = \int_{S'} \frac{ik(1 + \cos\theta')}{4\pi\rho} e^{-ik\rho} E'(x', y')\, dS' \tag{3.29}$$

$$\sigma' E'(x', y') = \int_{S} \frac{ik(1 + \cos\theta)}{4\pi\rho} e^{-ik\rho} E(x, y)\, dS \tag{3.30}$$

unde σ şi σ' sînt constante complexe care specifică valorile proprii ale ecuaţiilor integrale de mai sus.

(Într-adevăr, calculul $E = E(E') = E(E'(E))$ implică admiterea relaţiei $E_{i+1} = \sigma E_i$ care pentru regim staţionar se scrie $E = \sigma E$).

Soluţiile ecuaţiilor de mai sus satisfac ecuaţiile lui Maxwell în aproximaţia Kirchhoff, deci vor satisface şi condiţiile la limită pe suprafeţele S şi S' care cer anularea componentei tangenţiale a lui E, respectiv E'. Această cerinţă este îndeplinită dacă se admite suprapunerea în punctele P, respectiv P' a undelor directă şi reflectată, în opoziţie de fază, ceea ce implică o schimbare de fază a produsului $\sigma\sigma'$ egală cu $2\pi q$, unde q este un întreg. Aceste restricţii pentru schimbarea de fază determină setul discret de soluţii ale ecuaţiilor integrale (3.29) şi (3.30) care reprezintă modurile de oscilaţie ale rezonatorului.

Determinarea analitică a distribuţiei modale a cîmpului şi a condiţiei de rezonanţă.

Dintre metodele de rezolvare a ecuaţiilor (3.29) şi (3.30) mai semnificative sînt metoda de analiză numerică a lui Fox şi Li şi metoda analitică dezvoltată de Boyd, Gordon şi Kogelnik [61].

În cele ce urmează să vor discuta aceste metode pentru cazul rezonatorului confocal prezentat în fig. 3.4.

Metoda numerică a lui Fox şi Li este o metodă iterativă şi constă în calculul succesiv al cîmpurilor în punctele $P(P')$ funcţie de cîmpurile în punctele $P'(P)$ utilizîndu-se principiul lui Huygens. După un număr suficient de mare de iteraţii se ajunge la regim staţionar pentru distribuţia cîmpului şi fazei, comportarea fiind diferită pentru modurile simetrice în raport cu cele asimetrice. Curbele obţinute de Fox şi Li pentru distribuţia amplitudinilor şi fazei cîmpului sînt prezentate calitativ în figura 3.5.

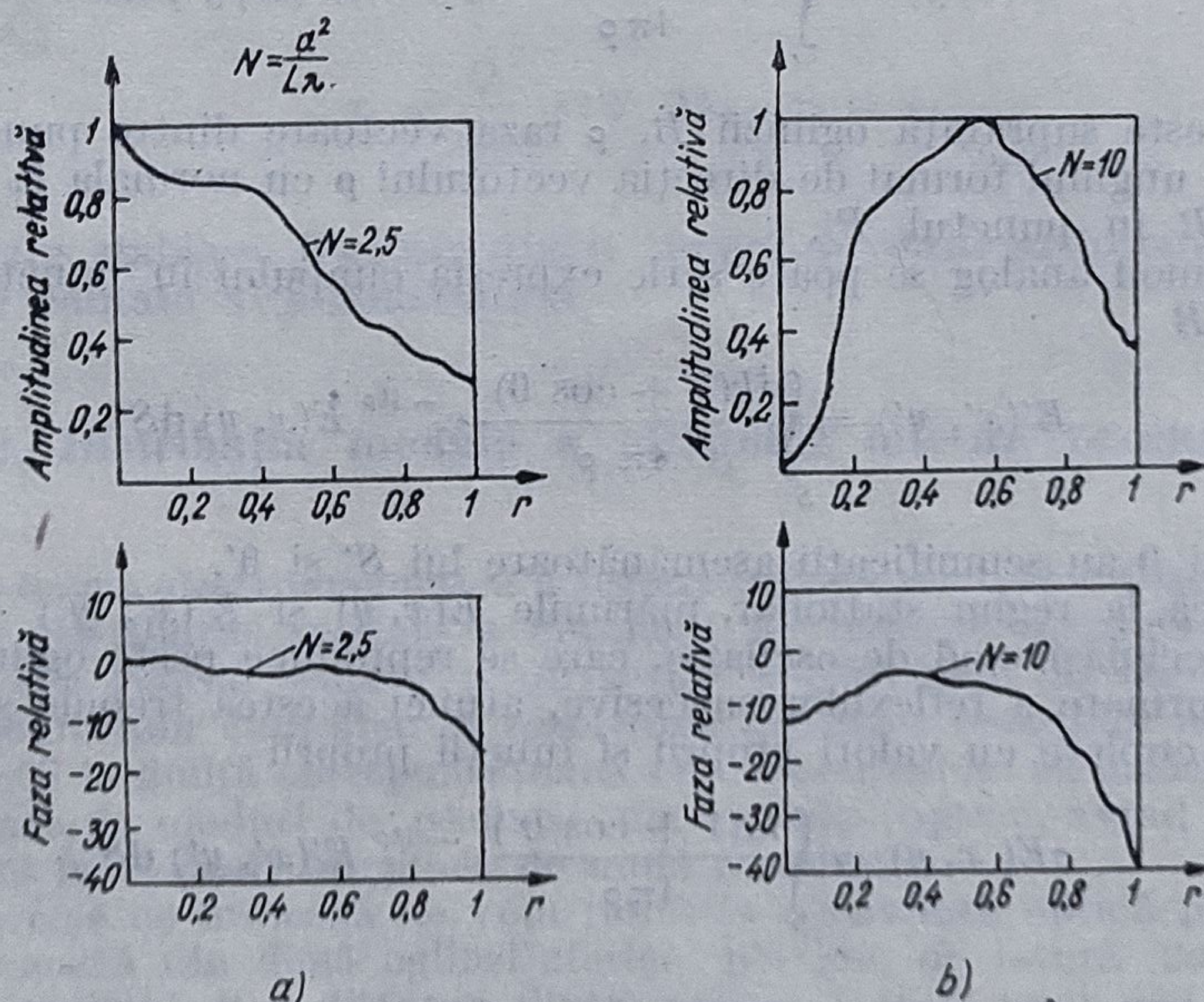


Fig. 3.5

Metoda analitică de calcul a distribuţiei modale a cîmpului constă în transformarea ecuaţiilor integrale ale lui Kirchhoff în ecuaţii Fredholm de speţa a doua ale căror soluţii generale sînt cunoscute.

Vom presupune că distribuţia cîmpului care determină modurile normale ale rezonatorului se reproduce peste fiecare oglindă succesiv după relaţia

$$E = E_1 f_r(x)\, g_s(y) \tag{3.31}$$

unde

$$E_1 = \sigma_r \sigma_s E_0. \tag{3.32}$$

Factorii σ_r şi σ_s ţin seama de schimbările de amplitudine şi fază după direcţiile x şi respectiv y pe care le suferă cîmpul în urma reflexiilor succesive, $f_r(x)$ şi $g_s(y)$ determină variaţiile cîmpului peste apertura oglinzii, iar E_0 este un factor de amplitudine constant. Indicii întregi r şi s specifică distribuţiile posibile ale cîmpului în cavitate, care determină modurile rezonatorului. Evident că $f_r(x)$ şi $g_s(y)$ reprezintă soluţii pentru oglinzi „infinite-strip", adică benzi paralele cu direcţiile x, respectiv y. Prin urmare, soluţiile pentru oglinda rectangulară se vor obţine ca produse ale soluţiilor de mai sus.

Cu notaţiile prezentate ecuaţiile (3.29) şi (3.30) se pot scrie astfel

$$E = \int\limits_{S'} \frac{ik(1+\cos\theta)}{4\pi\rho}\, \mathrm{e}^{-ik\rho} E_0 f_r(x')\, g_s(y')\, \mathrm{d}S' =$$

$$= E_0\, \sigma_r\, \sigma_s\, f_s(x)\, g_r(y) \tag{3.33}$$

care pentru θ mic şi $\rho \simeq R$ capătă forma

$$\sigma_r \sigma_s f_r(x)\, g_s(y) \int\limits_{-a}^{+a}\int\limits_{-a}^{+a} \frac{ik}{2\pi R}\, \mathrm{e}^{-ik\rho} f_r(x')\, g_s(y')\, \mathrm{d}x'\, \mathrm{d}y'. \tag{3.34}$$

Evaluarea termenului de fază $\mathrm{e}^{-ik\rho}$ se face ţinîndu-se seama de expresia lui ρ care se poate calcula astfel

$$\rho = \sqrt{L'^2 + (x'-x)^2 + (y'-y)^2} \tag{3.35}$$

unde

$$L' = L - \delta - \delta' \tag{3.36}$$

mărimile δ şi δ' avînd expresiile aproximative

$$\delta = R - (R^2 - r^2)^{1/2} \simeq \frac{r^2}{2R} \tag{3.37}$$

respectiv

$$\delta' = R - (R^2 - r'^2)^{1/2} \simeq r'^2/2R, \tag{3.38}$$

r şi r' fiind distanţele punctelor curente P şi P' în raport cu originea sistemelor de axe rectangulare Ox şi Oy, respectiv $O'x'$ şi $O'y'$, poziţionate în planele normale pe axa sistemului, care trec prin punctele P şi P' iar δ şi δ' distanţele de la aceste plane la vîrfurile oglinzilor, măsurate pe axa

sistemului. Se obține

$$\rho = L - \frac{xx' + yy'}{L} - \frac{L-R}{2RL}(x^2 + x'^2 + y^2 + y^2) +$$

$$+ \textit{ termeni nesemnificativi.} \tag{3.39}$$

Pentru rezonatorul confocal $L = R$ astfel că rezultă

$$\rho = R - \frac{xx' + yy'}{R}. \tag{3.39'}$$

Prin urmare, factorul de fază $e^{-ik\rho}$ se poate scrie sub forma

$$\exp[-ik\rho] = \exp\{-ikR[1 - (xx' + yy')/R^2]\}. \tag{3.40}$$

Din relațiile (3.34) și (3.40) rezultă ecuația integrală

$$\sigma_r \sigma_s f_r(x)\, g_s(y) = \int_{-a}^{+a}\int_{-a}^{+a} \frac{ik}{2\pi R} e^{-ikR} e^{\frac{ikxx'}{R}} e^{\frac{ikyy'}{R}} \cdot f_r(x')\, g_s(y') dx'\, dy'. \tag{3.41}$$

În continuare, dacă se introduc coordonatele reduse

$$X = \frac{x\sqrt{c}}{a},\quad Y = \frac{y\sqrt{c}}{a},\quad \text{unde } c = \frac{a^2k}{R} = 2\pi N, \tag{3.42}$$

N fiind numărul lui Fresnel ($N = a^2/\lambda R$, vezi § 3.3.3), și notațiile

$$F_r(X) = f_r(x) \text{ și } G_s(Y) = g_s(y) \tag{3.43}$$

rezultă ecuația integrală

$$\sigma_r \sigma_s F_s(X)\, G_s(Y) = \frac{i}{2\pi} e^{-ikR} \int_{-\sqrt{c}}^{+\sqrt{c}}\int_{-\sqrt{c}}^{+\sqrt{c}} F_r(X')\, e^{iXX'} \cdot G_s(Y')\, e^{iYY'} dX'\, dY'. \tag{3.44}$$

În cazul rezonatorului cu oglinzi dreptunghiulare, în ecuația (3.44) se pot separa variabilele astfel că se obțin două ecuații de tip Fredholm, de speța a doua, cu nucleu simetric, fiecare fiind valabilă pentru o oglindă „infinite-strip". Funcțiile proprii care se obțin sînt funcțiile prolată sferoidale unghiulare.

În cazul rezonatorilor cu oglinzi circulare se pot introduce coordonatele polare și în locul „transformatei Fourier" caracteristică ecuațiilor de tip Fredholm se obțin „transformate" de tip Hankel, funcțiile proprii corespunzătoare fiind funcțiile hipersferoidale.

Deoarece în ambele cazuri, intensitatea modului scade exponențial de la centrul oglinzii spre exterior, astfel că influența dimensiunii finite a oglinzilor asupra configurației modurilor este neglijabilă, apar simplificării ale teoriei care conduc la funcții proprii de tip Hermite-Gauss, pentru

cazul oglinzilor „infinite-strip" și la funcții proprii de tip Laguerre — Gauss pentru cazul oglinzilor circulare.

În cazul oglinzilor dreptunghiulare pe care-l analizăm, introducîndu-se notația

$$\beta_r \beta_s = \sigma_r \sigma_s / \mathrm{i} \exp\,[-\mathrm{i}kR], \tag{3.45}$$

în ecuația (3.44) se separă variabilele obținîndu-se ecuațiile integrale de tip Fredholm unidimensionale

$$F_r(X) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\,\beta_r} \int_{-\sqrt{c}}^{+\sqrt{c}} F_r(X')\, e^{\mathrm{i}XX'}\, \mathrm{d}X' \tag{3.46}$$

$$G_s(Y) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\,\beta_s} \int_{-\sqrt{c}}^{+\sqrt{c}} G_s(Y')\, e^{\mathrm{i}YY'}\, \mathrm{d}Y'. \tag{3.47}$$

Ținînd seama că pentru sistemele laser practice N are valori de ordinul zecilor, ceea ce face posibilă neglijarea influenței dimensiunilor finite ale oglinzilor, limitele de integrare în ecuațiile de mai sus pot fi făcute infinite, astfel că soluțiile aproximative ale ecuațiilor de mai sus sînt polinoame de tip Hermite.

Pentru găsirea lor, se pleacă de la funcția generatoare a acestui tip de polinoame

$$g(y, t) = \exp\,(-t^2 + 2\,ty) = \exp\,(y^2) \exp\,[-(t-y)^2] =$$
$$= \sum_{r=0}^{\infty} \frac{H_r(y)}{r!}\, t^r. \tag{3.48}$$

Multiplicînd expresia (3.48) cu $\exp\,[\mathrm{i}xy - y^2/2]$ și integrînd se obține egalitatea

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \exp\,[2yt - t^2 + \mathrm{i}xy - (y^2/2)]\, \mathrm{d}y =$$
$$= \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\,[\mathrm{i}xy - (y^2/2)] \sum_{r=0}^{\infty} \frac{H_r(y)}{r!}\, \mathrm{d}y. \tag{3.49}$$

Prin efectuarea integralei din partea stîngă a egalității (3.49), ținîndu-se seama de expresia (3.48) și intervertind integrarea cu însumarea în partea dreaptă, ecuația (3.49) se transformă astfel

$$\sqrt{2} \exp\,(-x^2/2) \sum_{r=0}^{\infty} \frac{(\mathrm{i}t)^r}{r!} H_r(x) =$$
$$= \sum_{r=0}^{\infty} \frac{t^r}{r!} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\,[\mathrm{i}xy - (y^2/2)]\, H_r(y)\, \mathrm{d}y. \tag{3.50}$$

Deoarece egalitatea este valabilă pentru orice valoare a lui t, coeficienţii aceloraşi puteri ale lui t sînt egali încît se obţine

$$\exp\left[-x^2/2\right] H_r(x) = \frac{1}{i^r\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left[ixy - (y^2/2)\right] H_r(y)\,dy. \quad (3.51)$$

Comparînd expresiile (3.46) şi (3.51), rezultă soluţiile căutate ale ecuaţiei integrale

$$F_r(X) = \exp(-X^2/2)\, H_r(X) \quad (3.52)$$

cu

$$\beta_r = i^r. \quad (3.53)$$

Analog, pentru ecuaţia (3.47) rezultă

$$G_s(Y) = \exp(-Y^2/2)\, H_s(Y) \quad (3.54)$$

cu

$$\beta_s = i^s. \quad (3.55)$$

Funcţiile proprii $F_r(X)$ şi $G_s(Y)$ vor determina astfel distribuţiile modale ale cîmpului pe suprafaţa oglinzii după direcţiile x respectiv y.

Pierderile cavităţii şi condiţia de rezonanţă se pot obţine din analiza valorilor proprii ale ecuaţiei (3.41). Astfel din ecuaţia (3.45), introducîndu-se expresiile (3.53) şi (3.55), se obţine condiţia de fază

$$\sigma_r \sigma_s = i^{r+s+1} e^{-ikR}. \quad (3.56)$$

Dacă se ţine seama că la rezonanţă schimbarea de fază pentru un drum dus-întors trebuie să fie $2\pi q$, unde q este un întreg rezultă condiţia de rezonanţă

$$2\left|(r+s+1)\left(\frac{\pi}{2}\right) - kR\right| = 2\pi q, \quad (3.57)$$

unde factorul 2 din partea stîngă a relaţiei de mai sus ia în considerare cele două reflexii la un drum dus-întors al radiaţiei între oglinzi.

O exprimare echivalentă a condiţiei de rezonanţă (3.57) este următoarea

$$(4R/\lambda) = 2q + (r+s+1). \quad (3.58)$$

Setul de numere r, s, q, specifică modurile de oscilaţie ale cavităţii, obţinute prin rezolvarea ecuaţiei (3.41). Întrucît cîmpul care specifică modurile de oscilaţie are componenta după direcţia z neglijabilă, modurile sînt tansversal electromagnetice şi se notează TEM_{rsq}.

Toate modurile TEM_{rsq} formează un set complet ortonormat de funcţii proprii pentru orice cîmp transversal electromagnetic din cavitate.

În rezonatorii confocali, modurile TEM_{rsq}, TE_{srq}, $TEM_{r+1,\,s-1,\,q}$, $TEM_{r-1,\,s+1,\,q}$ . . . au aceeaşi frecvenţă de rezonanţă, prezentînd astfel o degenerescenţă ridicată, care dispare în cazul rezonatorilor neconfocali.

Indicii r, $s = 0, 1, 2, 3, \ldots$ specifică variațiile modurilor în direcțiile x, respectiv y, deci modurile de oscilație transversale, pe cînd indicele $q \simeq 10^4 \div 10^7$ specifică modurile de oscilație longitudinale. Întrucît σ_r și σ_s iau în considerare și variațiile în amplitudine ale cîmpului datorită difracției, se poate defini un coeficient de pierderi pe tranzit

$$\alpha_d = 1 - |\sigma_r \sigma_s|^2. \tag{3.59}$$

Întrucît funcțiile proprii (3.53), (3.54) sînt reale, suprafețele reflectătoare ale oglinzilor sînt suprafețe de fază constantă.

Forma explicită a funcțiilor proprii $f_r(x)$ și $g_s(y)$ se obține dacă se ține seama de notațiile (3.42). Astfel funcțiile proprii $f_r(x)$ vor fi date de expresiile :

$$f_r(x) = \text{ct}\, H_r[x\sqrt{2\pi/R\lambda}]\exp[-\pi x^2/R\lambda] \tag{3.60}$$

care reprezintă produse între un polinom Hermite și o gaussiană, astfel că se numesc „de tip Hermite — Gauss".

Ținîndu-se seama și de forma funcțiilor $g_s(y)$, distribuția cîmpului peste apertură va fi dată de produsul dintre funcția gaussiană, $\exp[-(x^2 + y^2)\pi/R\lambda]$ și polinoamele lui Hermite corespunzătoare.

În figura 3.6 se prezintă calitativ curbele care dau distribuția intensității cîmpului, pentru cîteva moduri de oscilație : TEM_{00q}, TEM_{10q}, TEM_{20q}. Se poate arăta că în doi lobi alăturați, cîmpul electric are faze

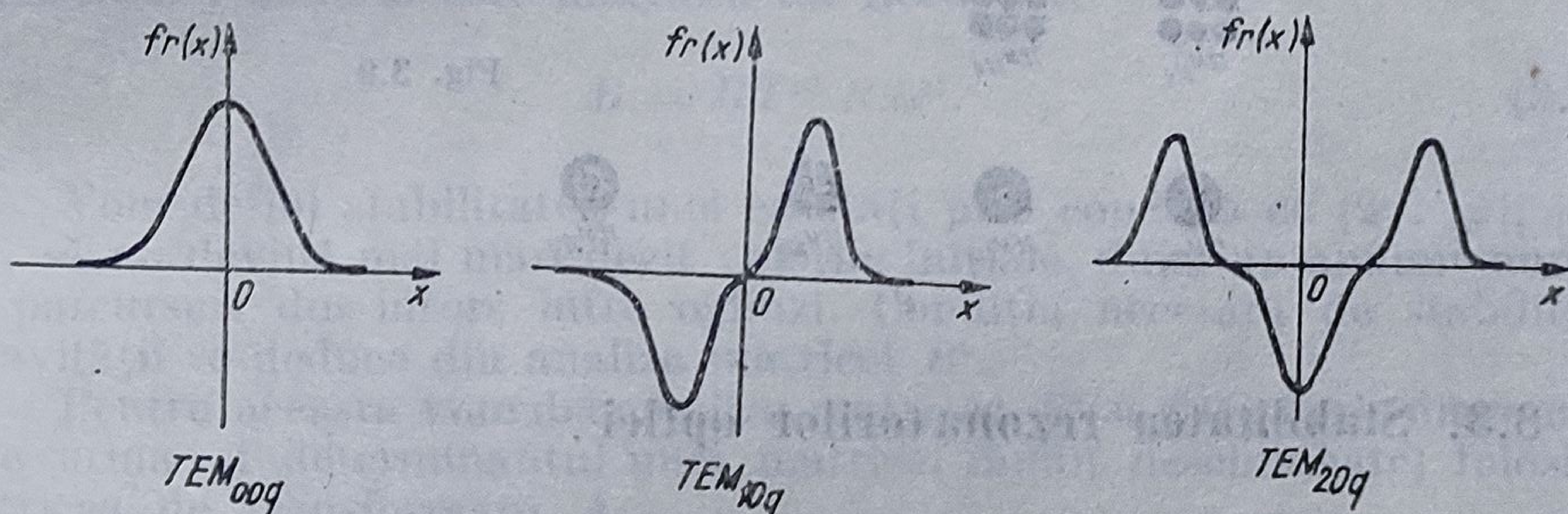


Fig. 3.6

opuse, deci numărul de noduri după o direcție tansversală indică numărul de schimbări de fază pe care le suferă cîmpul electric. O prezentare sugestivă a distribuției de fază a cîmpului pentru diferite moduri de osilație ale rezonatorului analizat este prezentată în fig. 3.7. În cazul rezonatorului cu

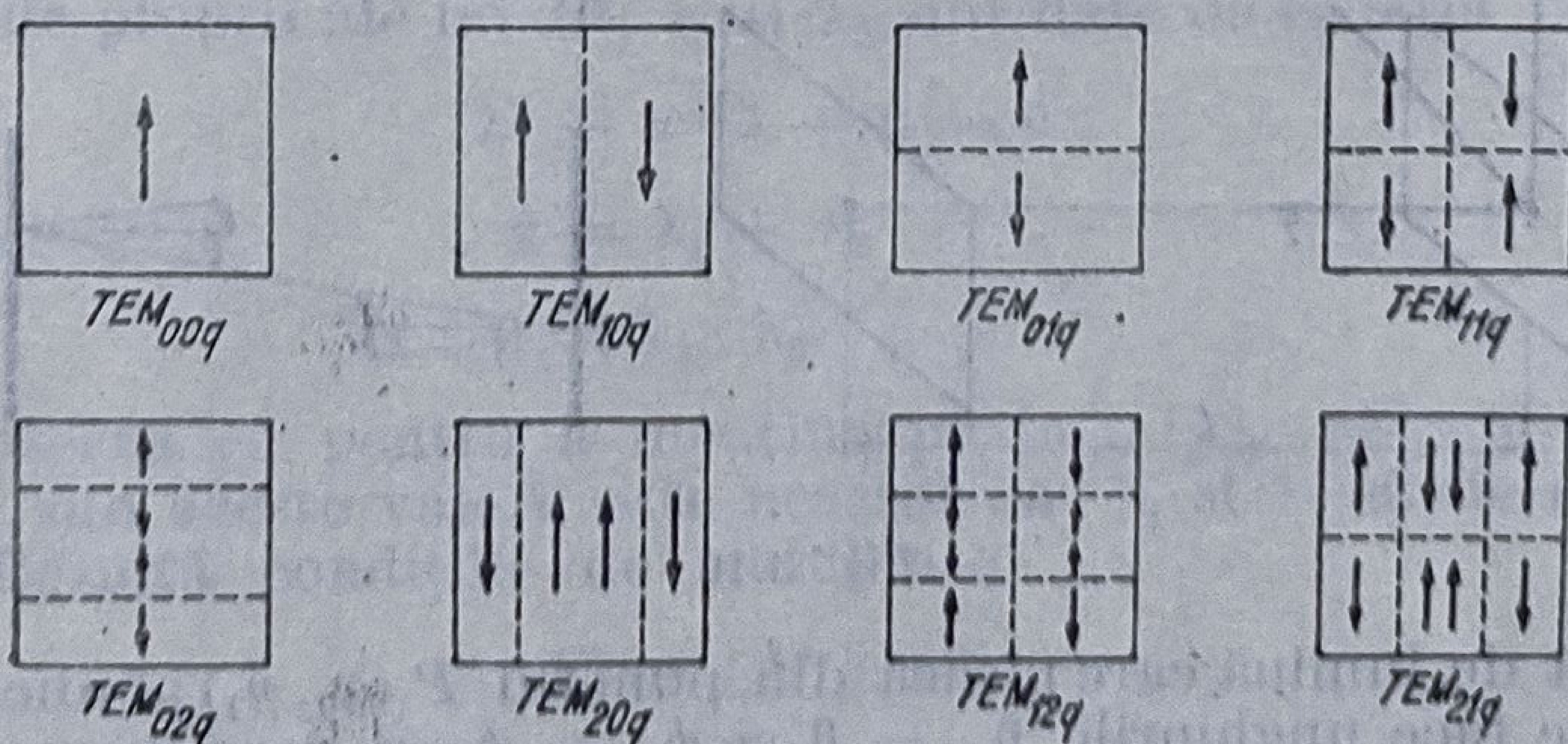


Fig. 3.7

oglinzi circulare, configurația fazei modurilor normale are aspectul din fig. 3.8. Distribuția spațială a intensității pe suprafața oglinzii este, de asemenea, prezentată calitativ în fig. 3.9, pentru primele moduri de oscilație: a) rezonatori cu oglinzi pătrate; b) rezonatori cu oglinzi circulare.

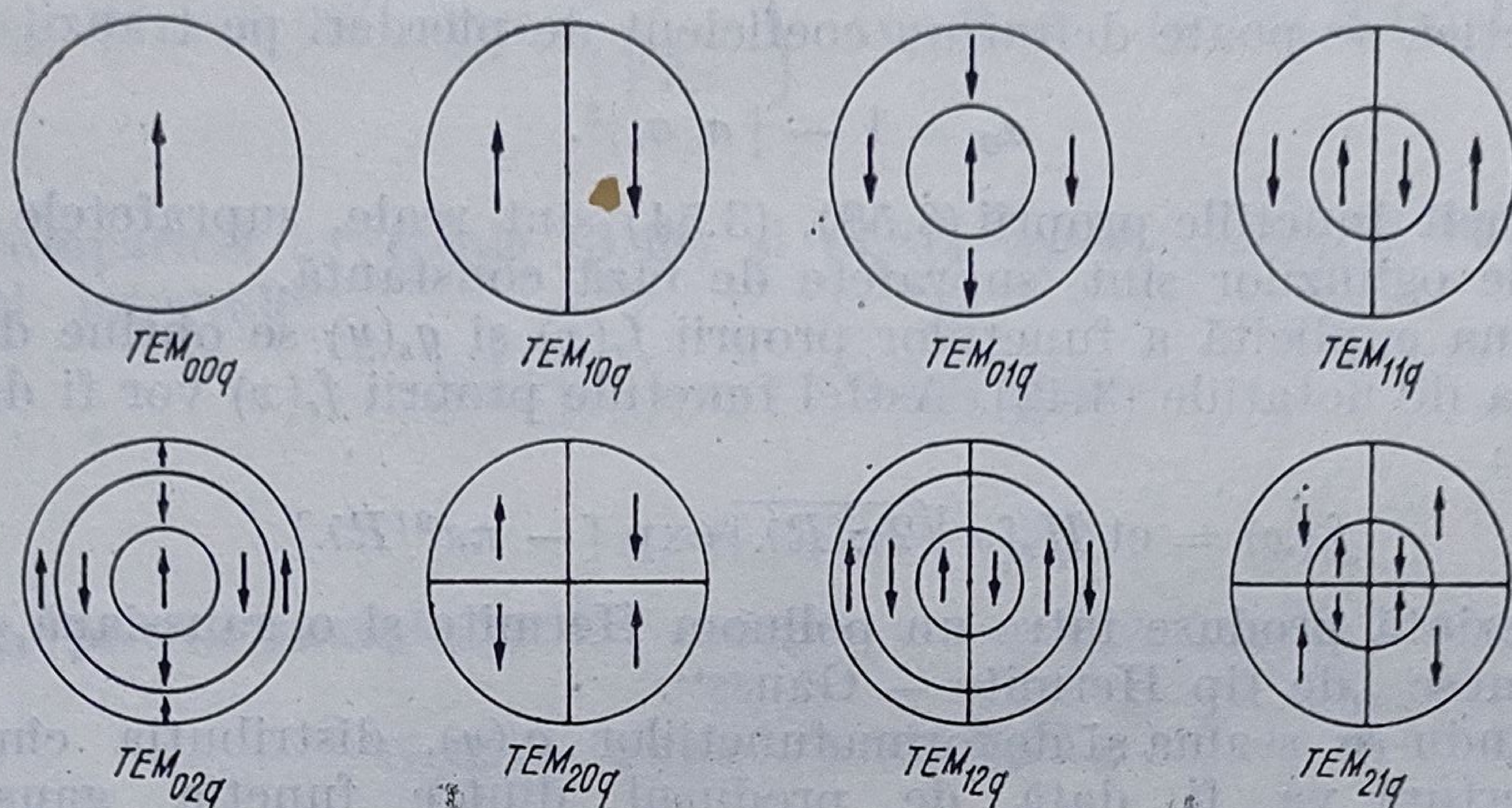


Fig. 3.8

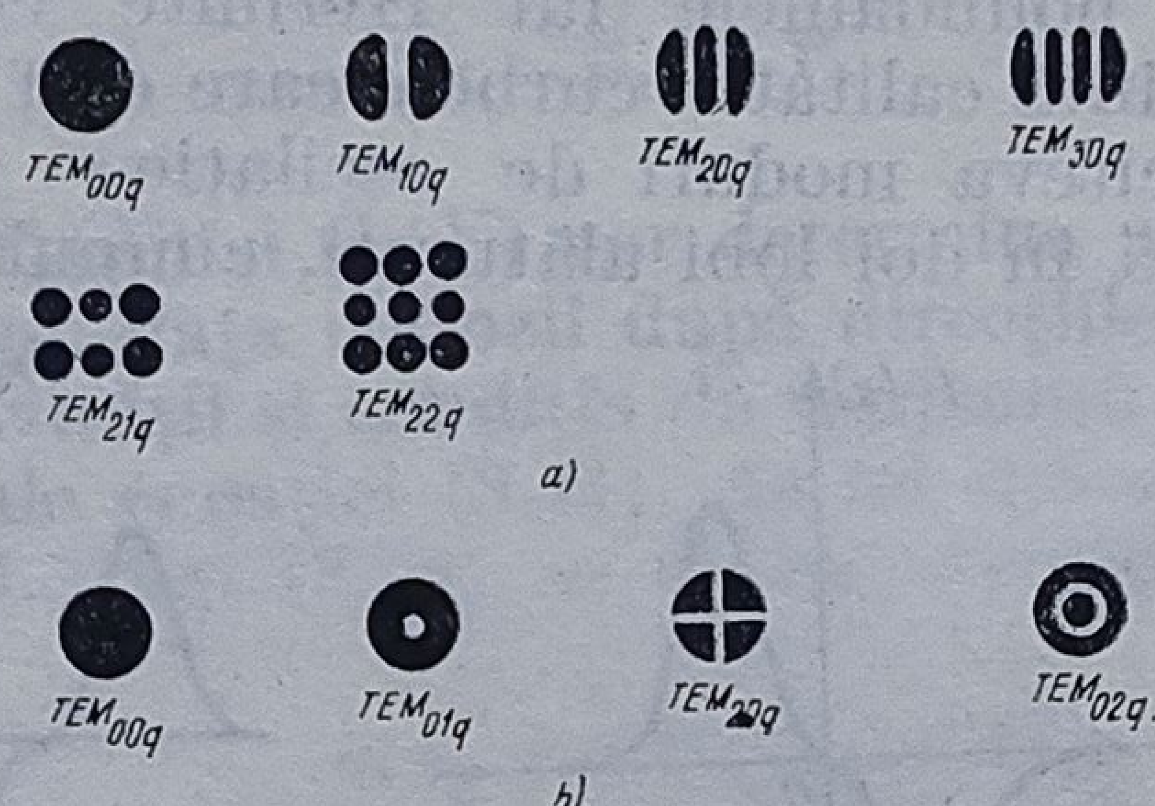


Fig. 3.9

3.3. Stabilitatea rezonatorilor optici

3.3.1. Condiția de stabilitate a unei cavități optice

Pentru analiza stabilității unei cavități optice rezonante, vom studia cazul particular al unei cavități formate din două oglinzi plane O_1 și O_2, așezate la distanța L (fig. 3.10). Concluziile obținute se pot generaliza apoi ușor la cavitățile optice cu oglinzi de orice tip.

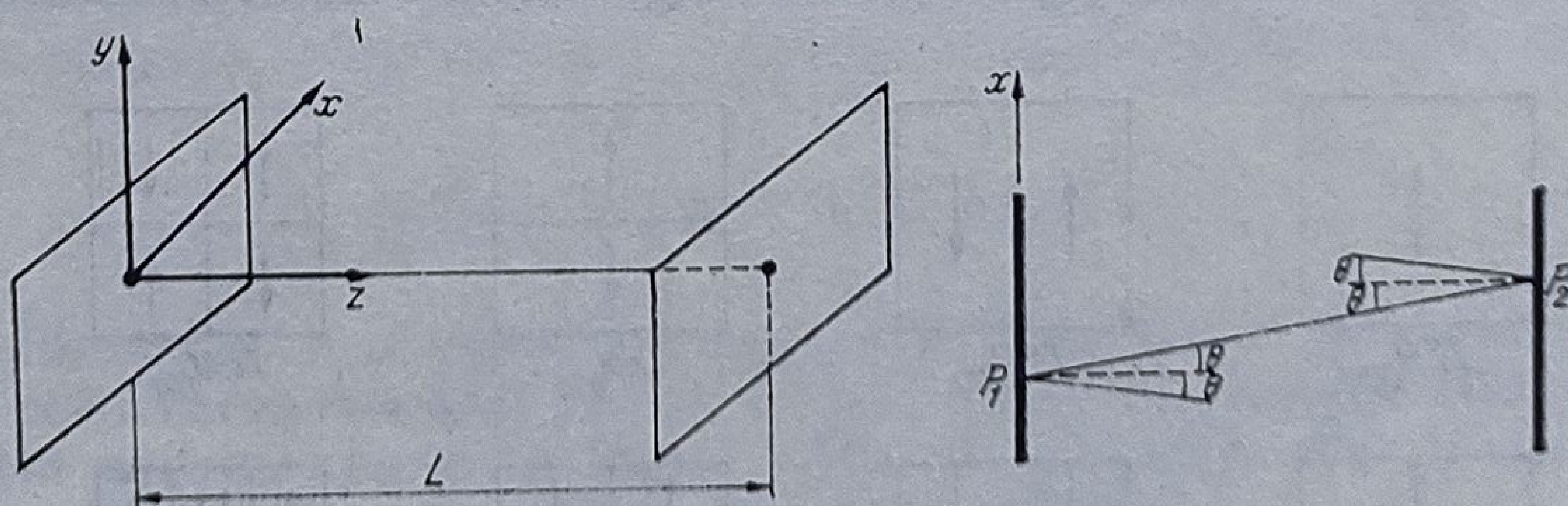


Fig. 3.10

O rază de lumină care pleacă din punctul $P_1(x_1, y_1)$ al unei oglinzi în direcția care face unghiurile $\theta_{r1} = \theta$ și $\phi_{r1} = \phi$ cu raza normală în acel punct la oglindă, în planele xz și yz respectiv, ajunge în punctul $P_2(x_2, y_2)$

al celeilalte oglinzi, după direcţia care face unghiurile θ_{i2} şi ϕ_{i2} cu raza normală în acest punct. De la oglinda O_2 raza va pleca în direcţia determinată de unghiurile θ_{r2} şi ϕ_{r2} în raport cu normala în P_2.

Parcursul razelor de lumină între cele două oglinzi va putea fi descris cu uşurinţă dacă se definesc matricele de transfer T_x^{12}, T_y^{12}

$$\begin{bmatrix} x_2 \\ \theta_{i2} \end{bmatrix} = T_x^{12} \begin{bmatrix} x_1 \\ \theta \end{bmatrix} \tag{3.61}$$

$$\begin{bmatrix} y_2 \\ \phi_{i2} \end{bmatrix} = T_y^{12} \begin{bmatrix} y_1 \\ \phi \end{bmatrix} \tag{3.62}$$

şi matricele de reflexie R_x, R_y

$$\begin{bmatrix} x_2 \\ \theta_{r2} \end{bmatrix} = R_x \begin{bmatrix} x_2 \\ \theta \end{bmatrix} \tag{3.63}$$

şi

$$\begin{bmatrix} y_2 \\ \phi_{r2} \end{bmatrix} = R_y \begin{bmatrix} y_1 \\ \phi \end{bmatrix}. \tag{3.64}$$

Un număr de n parcursuri dus-întors între oglinzi va fi descris de matricea B^n, unde B este matricea lui Bertolotti

$$B = RT^{12}\,RT^{21}. \tag{3.65}$$

Vom defini stabilitatea unei cavităţi prin condiţia ca $|x|$, $|y|$, $|\theta|$, $|\phi|$, să nu devină mai mari decît valorile iniţiale, după un anumit număr de parcursuri dus-întors între oglinzi. Condiţia necesară de stabilitate a cavităţii se deduce din analiza matricei B^n.

Pentru aceasta vom diagonaliza matricea B^n(se ştie că prin diagonalizare urma şi determinantul unei matrice. rămîn neschimbate) folosind matricea de transformare A

$$B_d^n = A^{-1}\,B^n A. \tag{3.66}$$

Se obţine

$$B_d^n = \begin{bmatrix} \lambda_1 & 0 \\ 0 & \lambda_2 \end{bmatrix}. \tag{3.67}$$

Valorile proprii ale lui B^n, λ_1 şi λ_2 sînt date de ecuaţia

$$\lambda^2 - \alpha \cdot \lambda + \beta = 0 \tag{3.68}$$

unde

$$\alpha = \lambda_1 + \lambda_2 \tag{3.69}$$

$$\beta = \lambda_1 \cdot \lambda_2. \tag{3.70}$$

Se observă că pentru a menţine pe $|x|$, $|y|$, $|\phi|$, $|\theta|$ la valorile iniţiale sau sub aceste valori, este necesar ca λ_1 şi λ_2 să fie mai mici ca unitatea. Rezultă condiţiile de stabilitate

$$\text{Urm}\ [B^n] \leqslant 2 \tag{3.71}$$

$$\text{Det}\ [B^n] \leqslant 1. \tag{3.72}$$

În cazul cavității cu oglinzi plane considerate se obține pentru matricea B, expresia

$$B = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & L \\ 0 & -L \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & L \\ 0 & -1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 2L \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (3.73)$$

astfel că B^n este dată de formula

$$B^n = \begin{bmatrix} 1 & 2nL \\ 0 & 1 \end{bmatrix}. \quad (3.74)$$

În cazul unei cavități formată din două oglinzi concave O_1 și O_2, de raze de curbură R_1 și R_2 separate prin distanța L, calculul matricei B se face în mod asemănător.

$$B = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -2/R_1 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & L \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -2/R_2 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & L \\ 0 & -1 \end{bmatrix}. \quad (3.76)$$

În acest caz condiția de stabilitate se reduce la inegalitatea

$$g_1 \cdot g_2 \leqslant 1 \quad (3.76)$$

unde

$$g_1 = 1 - \frac{L}{R_1} \text{ și } g_2 = 1 - \frac{L}{R_2}. \quad (3.76')$$

Într-un sistem de axe g_1, g_2 se poate obține grafic diagrama de stabilitate pentru cavitățile cu oglinzi concave (fig. 3.11). Zona hașurată corespunde unor geometrii de cavități stabile. O tratare mai completă a rezonatorilor optici este prezentată în lucrarea [61].

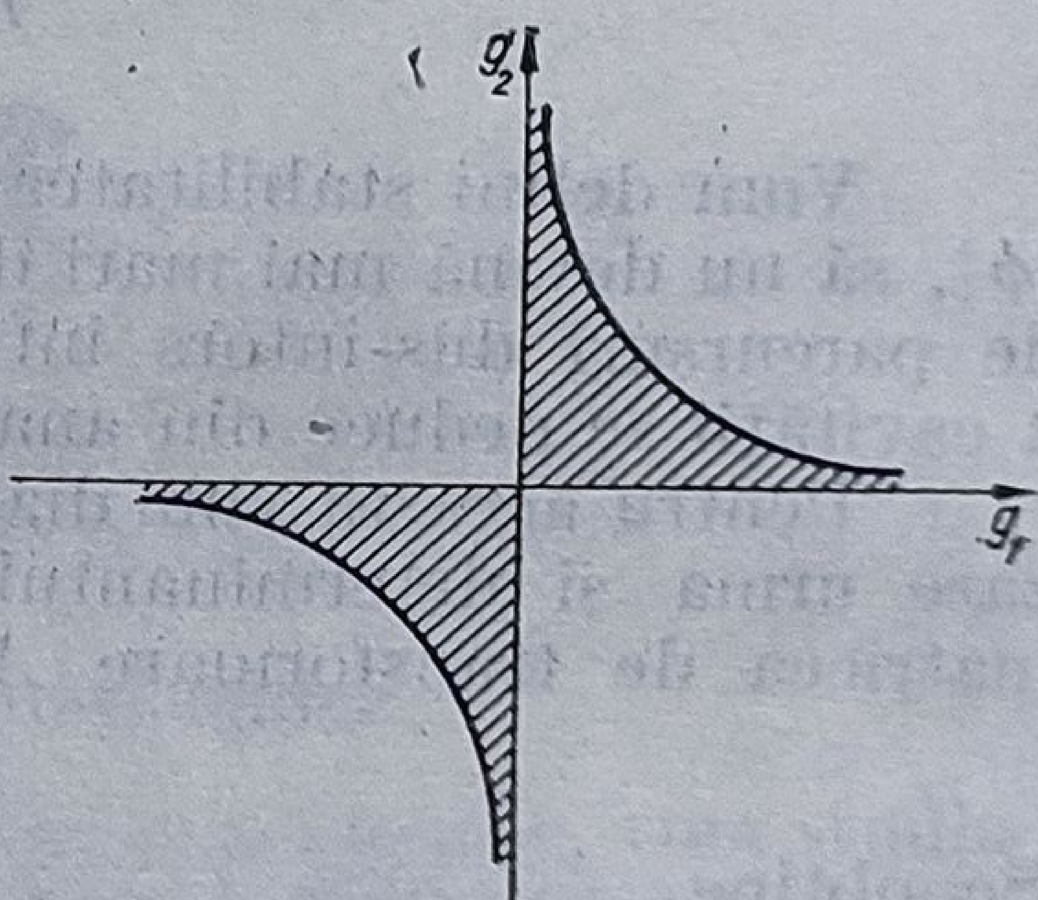


Fig. 3.11

3.3.2. Cavitatea rezonantă tratată ca o secvență de lentile

Fie, în cazul general, traseul unei raze printr-un sistem optic (fig. 3.12) definit în aproximația paraxială prin parametrii : r_i — distanțele față de axa optică a sistemului și r' pantele razei în raport cu aceeași axă, în diferite plane P_i, P_1 fiind planul de intrare, P_3 și P_4 planele principale ale sistemului optic, iar P_2 planul de ieșire al acestuia.

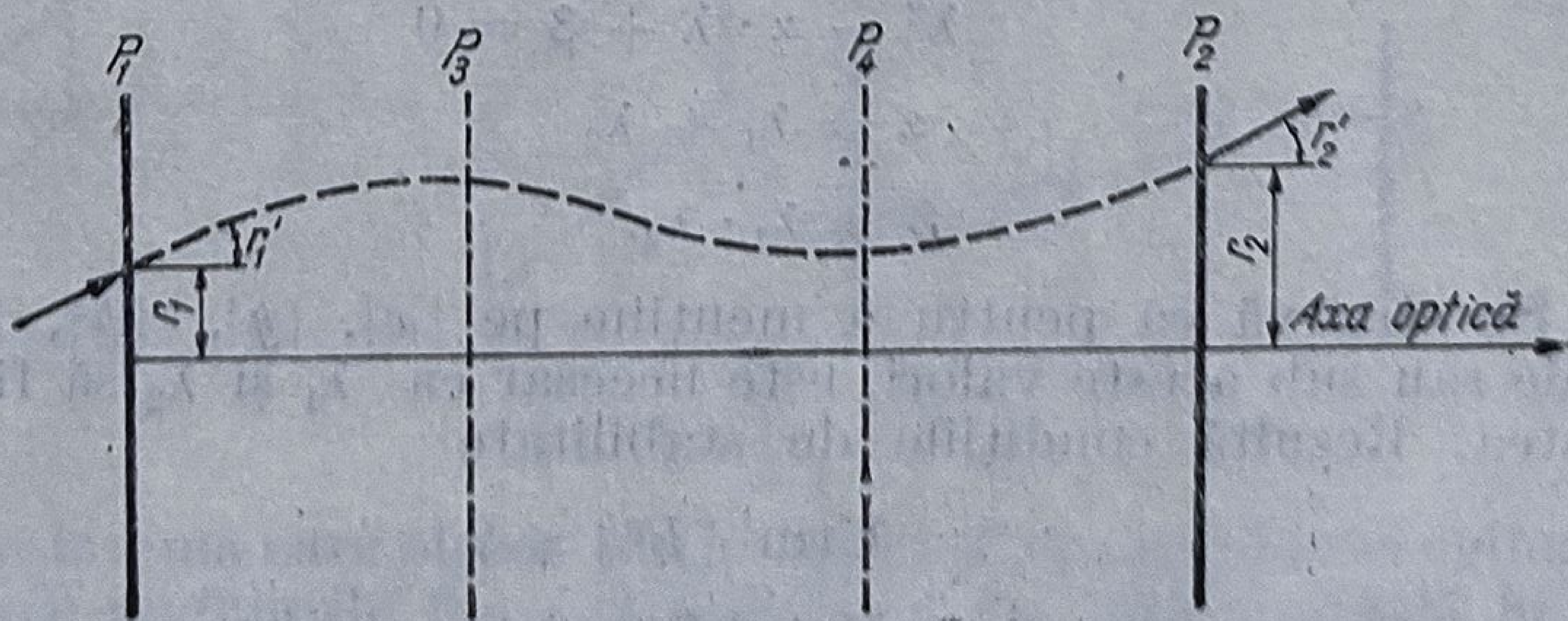


Fig. 3.12

Dependenţa între parametrii de ieşire r_2, r_2' şi cei de intrare r_1, r_1' este liniară, putîndu-se exprima cu ajutorul matricei $ABCD$, de determinant unitar, definită astfel

$$\begin{bmatrix} r_2 \\ r_2' \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \begin{bmatrix} r_1 \\ r_1' \end{bmatrix}. \tag{3.77}$$

Să considerăm cazul unui rezonator cu oglinzi sferice de raze de curbură R_1 şi R_2. Razele de lumină care se propagă între cele două oglinzi ale rezonatorului sînt supuse unui efect de focalizare periodică ca şi cum ar parcurge o secvenţă de lentile care formează o linie optică de transmisie (fig. 3.13). Se poate admite că un element al acestei secvenţe periodice este format dintr-un interval de lărgime L şi o lentilă cu distanţa focală $f_1 = R_1/2$ urmate de un alt interval de lărgime L şi o lentilă cu distanţa focală $f_2 = R_2/2$. Matricea $ABCD$ de transfer a razelor pentru un astfel de element are expresia

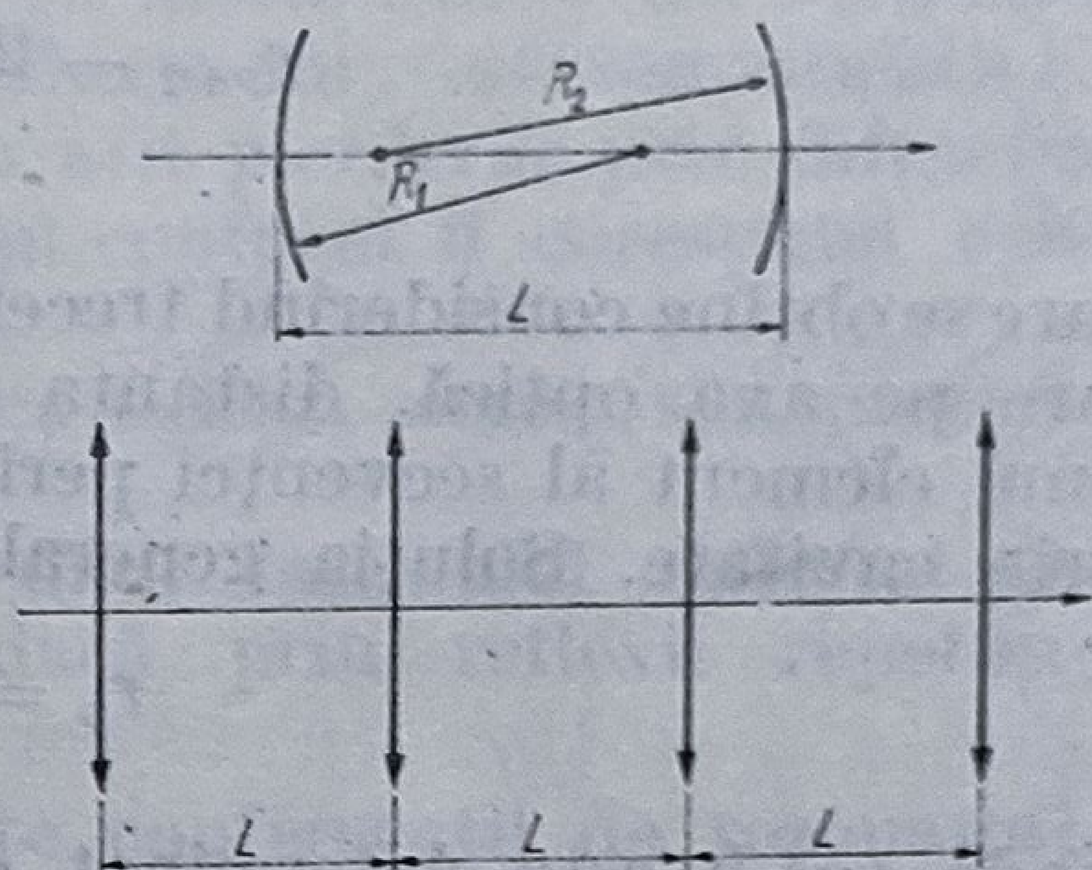


Fig. 3.13

$$\begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & L \\ -\frac{1}{f_1} & 1-\frac{L}{f_1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & L \\ -\frac{1}{f_2} & 1-\frac{L}{f_2} \end{bmatrix} =$$

$$= \begin{bmatrix} 1-\frac{L}{f_2} & L + L\left(1-\frac{L}{f_2}\right) \\ -\frac{1}{f_1}-\frac{1}{f_2}\left(1-\frac{L}{f_1}\right) & \left(1-\frac{L}{f_1}\right)\left(1-\frac{L}{f_2}\right)-\frac{L}{f_1} \end{bmatrix}. \tag{3.78}$$

Pentru întreaga secvenţă, formată din n astfel de elemente se obţine

$$\begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix}^n = \frac{1}{\sin\theta}\begin{bmatrix} A\sin n\theta - \sin(n-1)\theta & B\sin n\theta \\ C\sin n\theta & D\sin n\theta - \sin(n-1)\theta \end{bmatrix}, \tag{3.79}$$

unde
$$\cos\theta = \frac{1}{2}(A+D). \tag{3.80}$$

Condiţia

$$-1 \leqslant \cos\theta = \frac{A+D}{2} \leqslant 1 \tag{3.81}$$

este suficientă pentru ca secvenţa periodică să fie stabilă. Scriind condiţia (3.81) sub forma

$$0 \leqslant \frac{A+D+2}{4} \leqslant 1 \tag{3.82}$$

din (3.78) rezultă

$$0 \leqslant \left(1 - \frac{L}{R_1}\right)\left(1 - \frac{L}{R_2}\right) \leqslant 1, \tag{3.83}$$

identică cu condiția (3.67).

Un alt mod de obținere a condiției (3.81) se bazează pe ecuația cu diferențe de ordinul al doilea

$$r_{p+2} - 2\left(\frac{A+D}{2}\right) r_{p+1} + r_p = 0 \tag{3.84}$$

care se obține considerînd trecerea razelor prin diferite plane p, perpendiculare pe axa optică, distanța dintre două astfel de plane corespunzînd unui element al secvenței periodice sau echivalent unui drum dus-întors prin cavitate. Soluția generală a acestei ecuații

$$r_p = r_{max} \sin(p\theta + \alpha) \tag{3.85}$$

unde cos θ este determinat de ecuația (3.80), implică condiția (3.81).

3.3.3. Tipuri de rezonatori optici

În paragrafele anterioare s-au făcut referiri la două tipuri particulare de rezonatori și anume rezonatorul Fabry-Pérot (cu oglinzi plane) și rezonatorul confocal.

Alte tipuri de rezonatori optici vor fi prezentate în continuare, evidențiindu-se particularitățile constructive și funcționale cele mai importante ale acestora.

În general, un bun rezonator optic este caracterizat prin: un factor de calitate Q cît mai ridicat; selectivitate ridicată a modurilor; cuplare optimă cu exteriorul; volum optim al modurilor; toleranță ridicată la aliniere.

Astfel, factorul de calitate ridicat al cavității determină un prag de oscilație mai scăzut al oscilatorului laser, selectivitatea modurilor este direct corelată cu monocromaticitatea liniei emise, volumul modului determină partea mediului activ care contribuie la amplificarea radiației etc.

Tabelul 3.1

Tipul rezonatorului	Razele oglinzilor	Distanța dintre oglinzi	Tipul rezonatorului	Razele oglinzilor	Distanța dintre oglinzi
Confocal	R	R	Semiconfocal	R, ∞	$R/2$
Plan-paralel	∞	L(oarecare)	Semiconcentric	R, ∞	R
Concentric	R	$2R$	Emisferic	R, ∞	R
Nesimetric	R_1, R_2	$L < R_1 + R_2$			

În cazul unui rezonator Fabry-Pérot cu oglinzi circulare de rază a situate la distanța L una în raport cu altă, se definește, corelat cu fenomenele

de difracţie, numărul lui Fresnel $N = \frac{a^2}{\lambda L}$, ea fiind aproximativ egal cu numărul de zone Fresnel văzute din centrul unei oglinzi pe cealaltă oglindă.

Această definiţie se formulează pe baza condiţiei de pierderi mici $\frac{a}{Ln} > \frac{\lambda}{a}$, pentru n treceri ale radiaţiei prin sistem. În mod obişnuit N este de ordinul 10^2, ceea ce atestă faptul că mecanismele de atenuare ale radiaţiei prin difracţie, transmisie şi reflexie nu sînt semnificative. Cu cît numărul lui Fresnel este mai mare cu atît pierderile prin difracţie sînt mai mici. Se poate arăta că rezonatorului confocal îi corespund cele mai mici pierderi prin difracţie.

Principalele tipuri de rezonatori optici cu oglinzi sferice sînt prezentate în tabelul 3.1

Un astfel de rezonator este stabil, dacă fasciculul reflectat de oglinzi este focalizat periodic şi instabil dacă prin reflexii repetate fasciculul se lărgeşte.

Diagrama de stabilitate pentru diferite configuraţii de rezonatori cu oglinzi sferice este prezentată în fig. 3.14.

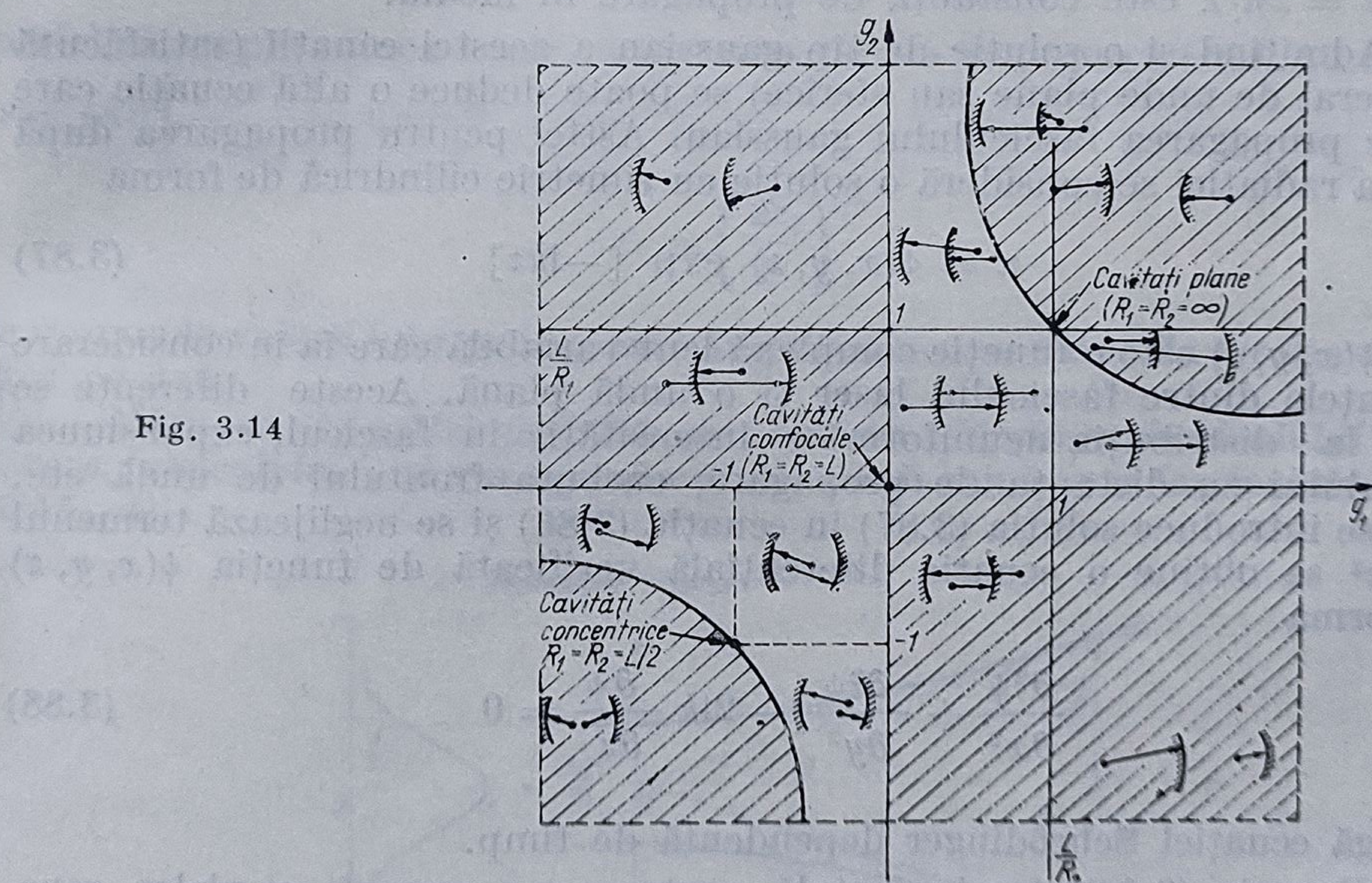


Fig. 3.14

Se constată că pentru acelaşi sistem de oglinzi, funcţie de distanţa dintre ele, rezonatorul poate fi stabil sau instabil. Originea sistemului de coordonate corespunde rezonatorilor confocali cu oglinzi avînd aceeaşi rază de curbură.

Funcţie de raza de curbură a oglinzilor şi de distanţa dintre ele un rezonator format din două oglinzi concave sau dintr-o oglindă concavă şi una convexă poate fi stabil sau instabil, pe cînd un rezonator format din două oglinzi convexe este întotdeauna instabil. Alte tipuri de rezonatori optici care prezintă interes sînt rezonatorii multireflector, rezonatorii în inel, rezonatorii cu oglinzi neegale, rezonatorii cu elemente de focali-

zare și dispersie interne etc. Un loc aparte îl ocupă rezonatorii cu reflectori Bragg sau cu reacție distribuită utilizați în realizarea laserilor cu semiconductori integrați.

3.4. Fascicule gaussiene

3.4.1. Parametri caracteristici ai fasciculului gaussian

Din teoria scalară a radiației electromagnetice dintr-o cavitate optică rezonantă, dezvoltată în § 3.2 pe baza ecuației Kirchhoff-Fresnel, s-a obținut pentru modul fundamental TEM_{00} o distribuție gaussiană, rezultat care poate fi corelat cu faptul că transformatele Fourier ale unor funcții gaussiene (realizate prin reflexii pe oglinzi) sînt funcții gaussiene. O descriere echivalentă se obține dacă se caută o soluție analitică aproximativă a ecuației de undă de tip Helmholtz

$$\Delta u + k^2 u = 0 \tag{3.86}$$

unde $k = 2\pi/\lambda$ este constantă de propagare în mediu.

Admițînd și o soluție de tip gaussian a acestei ecuații (satisfăcută în general de unde plane sau sferice) se poate deduce o altă ecuație care descrie propagarea fasciculului gaussian. Astfel pentru propagarea după axa z a radiației se consideră o soluție cu simetrie cilindrică de forma

$$u = \psi(x, y, z)\ \exp\ [-ikz] \tag{3.87}$$

unde $\psi(x, y, z)$ este o funcție complexă lent variabilă care ia în considerare diferențele dintre fasciculul laser și o undă plană. Aceste diferențe se referă la: distribuția neuniformă a intensității în fascicul, expansiunea fasciculului cu distanța de propagare, curbura frontului de undă etc. Dacă se introduce soluția (3.87) în ecuația (3.86) și se neglijează termenul $\partial^2\psi/\partial z^2$ se obține o ecuație diferențială verificată de funcția $\psi(x, y, z)$ sub forma

$$\frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial y^2} - 2ik\frac{\partial \psi}{\partial z} = 0 \tag{3.88}$$

analogă ecuației Schrödinger dependentă de timp.

Ecuația (3.88), fundamentală pentru propagarea fasciculelor gaussiene, se scriu în coordonate cilindrice astfel

$$\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial \psi}{\partial r}\right) - 2ik\frac{\partial \psi}{\partial z} = 0. \tag{3.89}$$

În continuare, se stabilesc condițiile în care ecuația (3.89) admite o soluție gaussiană de forma

$$\psi = \exp\left\{-i\left[P(z) + \frac{kr^2}{2q(z)}\right]\right\} \tag{3.90}$$

unde $r^2 = x^2 + y^2$, semnificația mărimilor $P(z)$ și $q(z)$ urmînd a fi determinată. Substituind soluția (3.90) în ecuația (3.89) și egalînd cu zero coeficienții diferitelor puteri ale lui r se obțin ecuațiile diferențiale ordinare

$$q'(z) = 1 \tag{3.91}$$

$$P'(z) = -\frac{\mathrm{i}}{q(z)}. \tag{3.92}$$

Ecuația (3.91) admite soluția

$$q(z) = z + q_0 \tag{3.93}$$

unde q_0 corespunde lui $q(z)$ pentru $z = 0$. Din examinarea soluției ψ se observă că $q(z)$ nu poate fi real, iar printr-o alegere corespunzătoare a punctului $z = 0$, $q(z)$ poate fi considerat pur imaginar, de forma

$$q(z) = \mathrm{i}z_0. \tag{3.94}$$

Pentru $z = 0$, soluția (3.90) devine

$$\psi_0 = \exp\left[-\frac{kr^2}{2z_0}\right]\exp\left[-\mathrm{i}P_0\right] \tag{3.95}$$

astfel că amplitudinea scade cu distanța r de la axa optică conform expresiei $\exp\left[-\frac{r^2}{w_0}\right]$, unde

$$w_0 = \left(\frac{2z_0}{k}\right)^{1/2} \tag{3.96}$$

corespunde valorii lui r pentru care amplitudinea se reduce la $1/e$ din valoarea pe axă.

Mărimea w_0 astfel definită se numește „*lărgimea fasciculului*" sau „*raza fasciculului*", și corespunde dimensiunii minime a fasciculului (fig. 3.15, a).

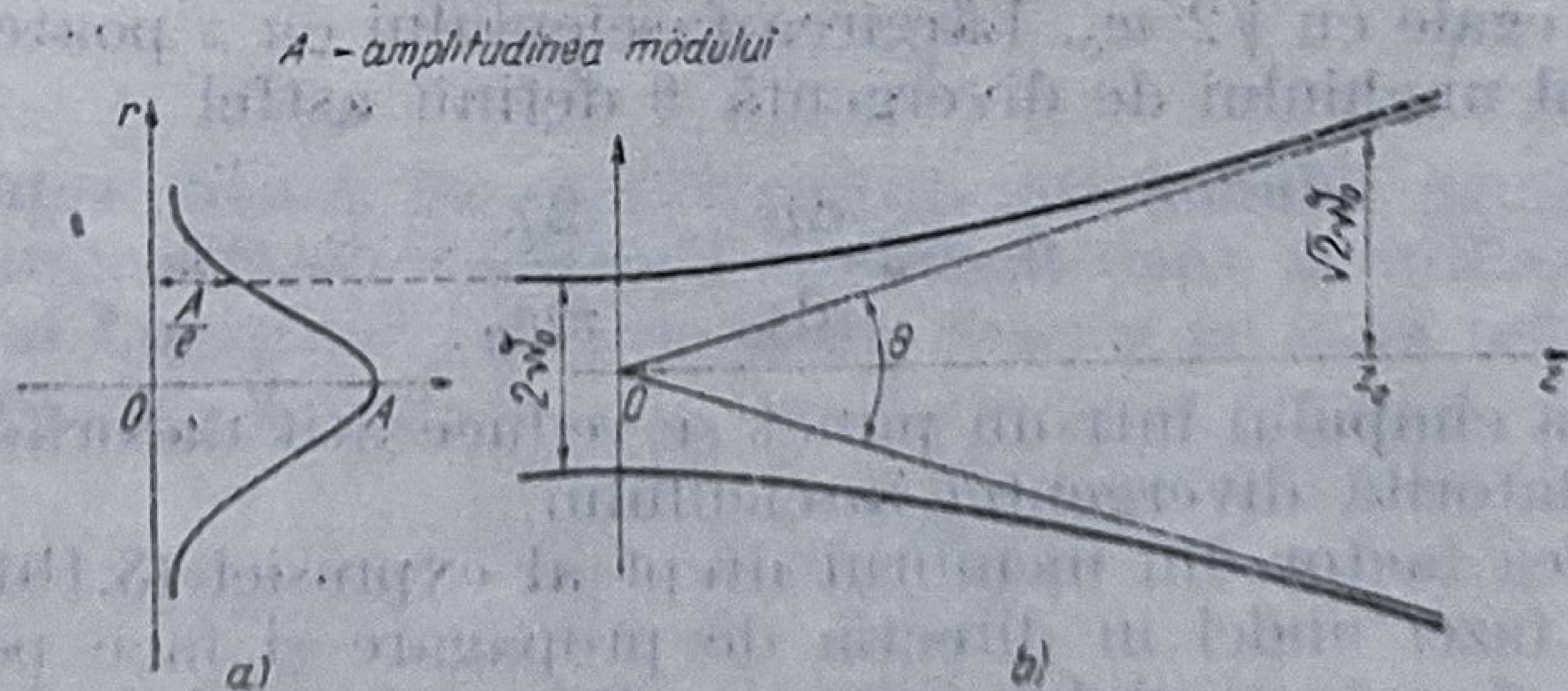


Fig. 3.15

Pentru $z \neq 0$, $q(z)$ este determinat de expresia (3.93) astfel încît soluția (3.90) se scrie explicit astfel

$$\psi = \exp\left[-\frac{kz_0r^2}{2(z^2 + z_0^2)}\right]\cdot\exp\left[-\frac{\mathrm{i}kzr^2}{2(z^2 + z_0^2)}\right]\exp\left[-\mathrm{i}P(z)\right]. \tag{3.97}$$

Prin analogie cu w_0, pe baza expresiei (3.97) se definește dimensiunea fasciculului la distanța z prin expresiile echivalente

$$w(z) = \left[\frac{2}{kz_0}(z_0^2 + z^2)\right]^{1/2} = w_0\left[1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2}\right)^2\right]^{1/2}. \qquad (3.98)$$

Totodată se definește și mărimea

$$R(z) = \frac{1}{z}(z^2 + z_0^2) = z\left[1 + \left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda z}\right)^2\right] \qquad (3.99)$$

numită *rază de curbură a frontului de undă* al fasciculului gaussian. Se observă că $R(z)$ și $w(z)$ sînt parametrii reali ai fasciculului corelați cu mărimea $q(z)$ numită *parametrul complex al fasciculului*. Dacă se integrează ecuația (3.92) se obține expresia

$$P(z) = \frac{1}{i}\left\{\ln\left[1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2\right]^{1/2} - \frac{i}{\operatorname{tg}\dfrac{z}{z_0}}\right\} \qquad (3.100)$$

astfel încît soluția (3.87) are forma generală completă

$$u = \left\{\frac{w_0}{w(z)}\exp\left[-\frac{r^2}{w^2(z)}\right]\right\}\exp\left\{-i\left[kz - \frac{1}{\operatorname{tg}\dfrac{z}{z_0}}\right]\right\}\exp\left[-i\frac{kr^2}{2R(z)}\right]. \qquad (3.101)$$

Pe baza expresiei (3.101) pot fi analizați în continuare parametrii fasciculului gaussian care constituie modul fundamental TEM_{00} al cîmpului electromagnetic din cavitate (fig. 3.15, b).

Primul factor din membrul drept al expresiei (3.101) descrie dependența amplitudinii modului de coordonatele r și z, mărimea w_0 corespunzînd secțiunii transversale minime a fasciculului, iar mărimea z_0 unei secțiuni transversale egale cu $\sqrt{2}\, w_0$. Lărgirea fasciculului cu z poate fi exprimată și cu ajutorul unghiului de divergență θ definit astfel

$$\theta = 2\frac{dw}{dz} = \frac{2\lambda}{\pi w_0}. \qquad (3.102)$$

Amplitudinea cîmpului într-un punct se reduce atît datorită dependenței de r cît și datorită divergenței fasciculului.

Al doilea factor din membrul drept al expresiei (3.101) evidențiază modificările fazei undei în direcția de propagare și face posibil calculul vitezei de fază a fasciculului (care rezultă puțin mai mare decît viteza luminii în mediu).

În sfîrșit, ultimul factor al expresiei (3.101) evidențiază faptul că planele z = ct. nu sînt suprafețe echifaze, aceste suprafețe fiind sferice cu raza de curbură $R(z)$, centrul aparent de curbură pentru fronturile de undă nefiind fix.

Prin urmare, mărimile $P(z)$ și $q(z)$ au semnificațiile:

— mărimea $P(z)$ indică schimbarea de fază complexă asociată cu propagarea fasciculului gaussian, partea reală a lui P reprezentînd dife-

Prin analogie cu w_0, pe baza expresiei (3.97) se definește dimensiunea fasciculului la distanța z prin expresiile echivalente

$$w(z) = \left[\frac{2}{kz_0}(z_0^2 + z^2)\right]^{1/2} = w_0\left[1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2}\right)^2\right]^{1/2}. \tag{3.98}$$

Totodată se definește și mărimea

$$R(z) = \frac{1}{z}(z^2 + z_0^2) = z\left[1 + \left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda z}\right)^2\right] \tag{3.99}$$

numită *rază de curbură a frontului de undă* al fasciculului gaussian. Se observă că $R(z)$ și $w(z)$ sînt parametrii reali ai fasciculului corelați cu mărimea $q(z)$ numită *parametrul complex al fasciculului*. Dacă se integrează ecuația (3.92) se obține expresia

$$P(z) = \frac{1}{\mathrm{i}}\left\{\ln\left[1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2\right]^{1/2} - \frac{\mathrm{i}}{\mathrm{tg}\,\dfrac{z}{z_0}}\right\} \tag{3.100}$$

astfel încît soluția (3.87) are forma generală completă

$$u = \left\{\frac{w_0}{w(z)}\exp\left[-\frac{r^2}{w^2(z)}\right]\right\}\exp\left\{-\mathrm{i}\left[kz - \frac{1}{\mathrm{tg}\,\dfrac{z}{z_0}}\right]\right\}\exp\left[-\mathrm{i}\,\frac{kr^2}{2R(z)}\right]. \tag{3.101}$$

Pe baza expresiei (3.101) pot fi analizați în continuare parametrii fasciculului gaussian care constituie modul fundamental TEM_{00} al cîmpului electromagnetic din cavitate (fig. 3.15, b).

Primul factor din membrul drept al expresiei (3.101) descrie dependența amplitudinii modului de coordonatele r și z, mărimea w_0 corespunzînd secțiunii transversale minime a fasciculului, iar mărimea z_0 unei secțiuni transversale egale cu $\sqrt{2}\, w_0$. Lărgirea fasciculului cu z poate fi exprimată și cu ajutorul unghiului de divergență θ definit astfel

$$\theta = 2\frac{\mathrm{d}w}{\mathrm{d}z} = \frac{2\lambda}{\pi w_0}. \tag{3.102}$$

Amplitudinea cîmpului într-un punct se reduce atît datorită dependenței de r cît și datorită divergenței fasciculului.

Al doilea factor din membrul drept al expresiei (3.101) evidențiază modificările fazei undei în direcția de propagare și face posibil calculul vitezei de fază a fasciculului (care rezultă puțin mai mare decît viteza luminii în mediu).

În sfîrșit, ultimul factor al expresiei (3.101) evidențiază faptul că planele $z = $ ct. nu sînt suprafețe echifaze, aceste suprafețe fiind sferice cu raza de curbură $R(z)$, centrul aparent de curbură pentru fronturile de undă nefiind fix.

Prin urmare, mărimile $P(z)$ și $q(z)$ au semnificațiile :

— mărimea $P(z)$ indică schimbarea de fază complexă asociată cu propagarea fasciculului gaussian, partea reală a lui P reprezentînd dife-

rența de fază dintre fasciculul gaussian și o undă plană ideală, iar partea imaginară a lui P evidențiind descreșterea expectată a intensității pe axă datorită expansiunii fasciculului;

— parametrul complex al fasciculului $q(z)$ descrie variațiile în intensitate ale acestuia cu distanța r de la axa optică precum și curbura frontului de undă (care lîngă axă este sferic).

Soluția (3.101) a ecuației (3.86) care definește modul fundamental al cîmpului electromagnetic din rezonator TEM_{00} nu este unică, deși este cea mai importantă.

În general, ecuația (3.86) admite un sistem ortogonal complet de soluții, numite „moduri de propagare", care sînt reprezentate analitic prin produse de polinoame Hermite și funcții Gauss, rezultate în concordanță cu teoria dezvoltată în § 3.2.

3.4.2. Transformarea printr-o lentilă și legea ABCD pentru fascicule gaussiene

În aplicații, prezintă interes modul în care parametrii R și w care specifică geometria fasciculului gaussian se transformă la trecerea printr-un sistem optic.

Dacă ne referim la o lentilă subțire, se constată că aceasta transformă frontul de undă al fasciculului laser ca și pe cel al undelor sferice.

Se știe că o undă sferică poate fi caracterizată printr-un singur parametru — raza de curbură a frontului de undă R.

Astfel razele de curbură ale celor două fronturi de undă separate prin distanța z sînt corelate prin relația

$$R_2 = R_1 + z, \tag{3.103}$$

iar la trecerea printr-o lentilă cu distanța focală f, raza de curbură R_1 devine R_2 conform relației

$$\frac{1}{R_2} = \frac{1}{R_1} - \frac{1}{f}. \tag{3.104}$$

Dificultatea creată de caracterizarea fasciculului gaussian cu ajutorul a doi parametri R și w poate fi evitată dacă se utilizează parametrul complex al fasciculului q care poate fi scris pe baza relațiilor (3.93), (3.98) și (3.99) sub forma

$$\frac{1}{q} = \frac{1}{R} - \frac{2i}{kw^2}. \tag{3.105}$$

Ținîndu-se seama de analogia relațiilor (3.93) și (3.103) se poate observa că q trebuie să joace pentru fasciculul gaussian rolul razei de curbură pentru unda sferică R, astfel încît se mai numește *rază de curbură complexă a fasciculului*. Ca urmare, prin analogie cu ecuația (3.104), la trecerea printr-o lentilă $q(z)$ trebuie să se transforme conform ecuației

$$\frac{1}{q_2} = \frac{1}{q_1} - \frac{1}{f} \tag{3.106}$$

q_1 și q_2 fiind parametrii complecși de intrare respectiv de ieșire ai fasciculului, măsurați lîngă lentilă. Evident că atunci cînd acești parametrii se măsoară la distanțele d_1 respectiv d_2 de lentilă, ecuația (3.106) se transformă astfel

$$q_2 = \frac{(1 - d_2/f)q_1 + (d_1 + d_2 - d_1 d_2/f)}{(-q_1/f) + (1 - d_1/f)}. \tag{3.107}$$

O altă metodă de calcul a parametrului q_2 al fasciculului emergent la trecerea printr-un sistem optic constă în aplicarea legii $ABCD$, dacă matricea de transfer $ABCD$ a razelor paraxiale este cunoscută. Conform acestei legi, la trecerea printr-un sistem optic, parametrul complex q_1 al unui fascicul gaussian se modifică astfel

$$q_2 = \frac{Aq_1 + B}{Cq_1 + D}. \tag{3.108}$$

Această lege exprimă o corelație directă între teoria razelor paraxiale și teoria fasciculelor gaussiene. Stabilirea sa se face tot pe baza analogiei cu propagarea undelor sferice, pentru care raza de curbură de intrare R_1 se modifică conform relației

$$R_2 = \frac{AR_1 + B}{CR_1 + D}, \tag{3.109}$$

rezultat cunoscut din optică geometrică.

Cu ajutorul acestei legi se poate calcula, de exemplu, dimensiunea minimă a spotului focal pentru o lentilă dată.

3.4.3. Fascicule gaussiene în rezonatori stabili

Generarea setului complet de moduri de oscilație în cavitățile optice rezonante stabile trebuie corelată cu „adaptarea" dintre razele de curbură ale fasciculului gaussian la oglinzi și razele de curbură ale oglinzilor cavității.

În cazul adaptării, razele asociate cu fasciculul gaussian cad perpendicular pe suprafețele oglinzilor astfel că se reflectă pe același drum, determinînd configurația selfconsistentă stabilă caracteristică modurilor cavității. Dacă ne referim, de exemplu, la rezonatorul cu două oglinzi sferice, cu razele de curbură neegale, R_1 și R_2, din figura 3.16, se pune problema determinării poziției planului $z = 0$ în raport cu oglinzile, astfel încît suprafețele echifaze să fie adaptate cu suprafețele oglinzilor. Problema implică

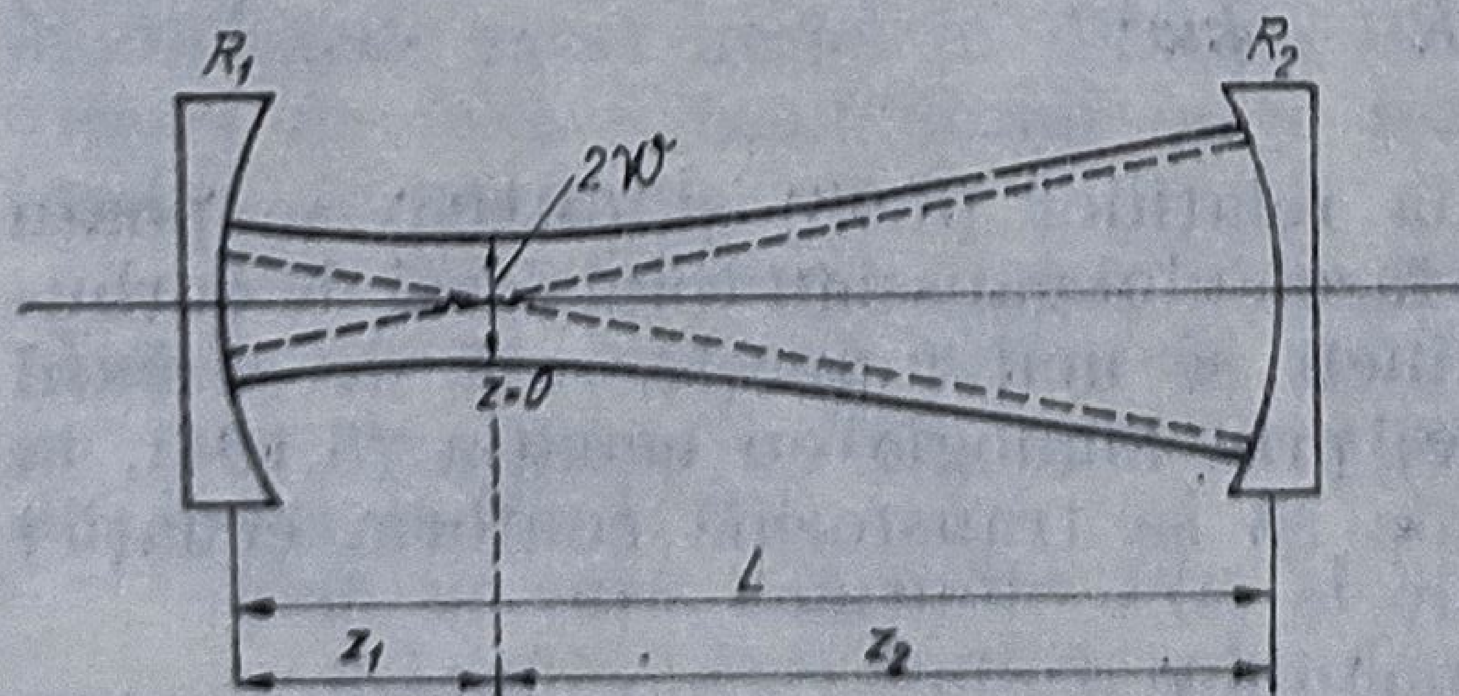


Fig. 3.16

rezolvarea următorului sistem neliniar de ecuații

$$z_1 + z_2 = L, \tag{3.110}$$

$$R(z_2) = R_2 = z_2\left[1 + \left(\frac{z_0}{z_2}\right)^2\right] \tag{3.111}$$

$$R(z_1) = - R_1 = - z_1\left[1 + \left(\frac{z_0}{z_1}\right)^2\right] \tag{3.112}$$

ale cărui soluții sînt următoarele

$$z_0^2 = \frac{L(R_1 - L)(R_2 - L)(R_1 + R_2 - L)}{(R_1 + R_2 - 2L)^2}, \tag{3.113}$$

$$z_1 = \frac{L(R_2 - L)}{R_1 + R_2 - 2L}, \tag{3.114}$$

$$z_2 = \frac{L(R_1 - L)}{R_1 + R_2 - 2L} \tag{3.115}$$

unde $z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ conform ecuației (3.96).

În cazul general al unor sisteme complexe, problema se rezolvă cu ajutorul legii $ABCD$, postulînd existența unor soluții de tip Hermite-Gauss pentru cîmpul din cavitate și impunînd condiția ca parametrul complex al fasciculului să se transforme în el însuși după fiecare traseu dus-întors prin cavitate, conform ecuației

$$q(z_1) = \frac{Aq(z_1) + B}{Cq(z_1) + D}. \tag{3.116}$$

Soluția acestei ecuații

$$\frac{1}{q(z_1)} = \frac{D - A}{2B} \pm \frac{i}{2B}\sqrt{4 - (A + D)^2} \tag{3.117}$$

este utilizată pentru calculul razei de curbură $R(z)$ și dimensiunii fasciculului la oglinzi $w(z)$.

Din condiția (3.117) rezultă și domeniile de valori pentru parametrii cavității, care asigură stabilitatea modurilor de oscilație.

3.4.4. Adaptarea modurilor

Atunci cînd modurile laser cu anumiți parametri, determinați de geometria rezonatorului sînt injectate în alte sisteme optice, o problemă importantă este cea a adaptării modurilor, adică a transformării unor fascicule gaussiene în altele, cu proprietăți date.

Se arată că o astfel de adaptare se realizează în cazul cel mai simplu cu o lentilă a cărei distanță focală f trebuie să fie mai mare decît o lungime caracteristică f_0 avînd expresia

$$f_0 = \pi w_1 w_2/\lambda, \tag{3.118}$$

prin ajustarea distanței dintre lentilă și planele $z = 0$ ale celor două fascicule de lărgimi w_1 și w_2, la aceste plane.

Ținînd seama de ecuația transformării printr-o lentilă (3.106) și de definițiile

$$q_1 = \frac{i\pi w_1^2}{\lambda} \text{ respectiv } q_2 = \frac{i\pi w_2^2}{\lambda} \tag{3.119}$$

ale parametrilor complecși ai fasciculelor care se adaptează se obțin pentru pozițiile d_1 și d_2 ale planelor $z = 0$, ale fasciculelor în raport cu lentila de adaptare, expresiile

$$d_1 = f \pm \frac{w_1}{w_2}\sqrt{f^2 - f_0^2} \tag{3.120}$$

$$d_2 = f \pm \frac{w_2}{w_1}\sqrt{f^2 - f_0^2} \tag{3.121}$$

putîndu-se alege în ambele expresii semnele (+) sau (−).

Problema adaptării modurilor intervine frecvent în studiul cuplării cavității laser cu diferite sisteme ca: interferometrele Fabry-Perot cu baleiaj, amplificatoarele regenerative, cristalele neliniare, secvențele de lentilă cu gaz sau dielectrice etc.

Observație

Propagarea fasciculelor gaussiene poate fi reprezentată grafic cu ajutorul diagramei cercului, utilizîndu-se planele complexe ale variabilelor

$$W = \frac{\lambda}{\pi w^2} + i\frac{1}{R} \tag{3.122}$$

și

$$Z = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} - iz \tag{3.123}$$

corelate prin transformarea conformă

$$W = \frac{1}{Z}. \tag{3.124}$$

Expresiile (3.122) și (3.123) depind de variabilele w, R, w_0 și z, utilizate pentru descrierea propagării fasciculelor gaussiene și corelate prin relația

$$\left(\frac{\lambda}{\pi w^2} + i\frac{1}{R}\right)\left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda} - iz\right) = 1, \tag{3.125}$$

identică cu (3.124) și obținută prin eliminarea parametrului complex al fasciculului q între ecuațiile (3.93) și (3.105).

4. BAZELE FIZICE ALE PROCESELOR LASER

4.1. Posibilități de descriere a proceselor laser

Pentru studiul interacției cîmp-substanță în cazul laserilor s-au dezvoltat mai multe tipuri de formalisme cu diferite grade de generalitate. Prezentarea acestor formalisme are la bază modelul general al sistemului laser prezentat în figura 4.1.

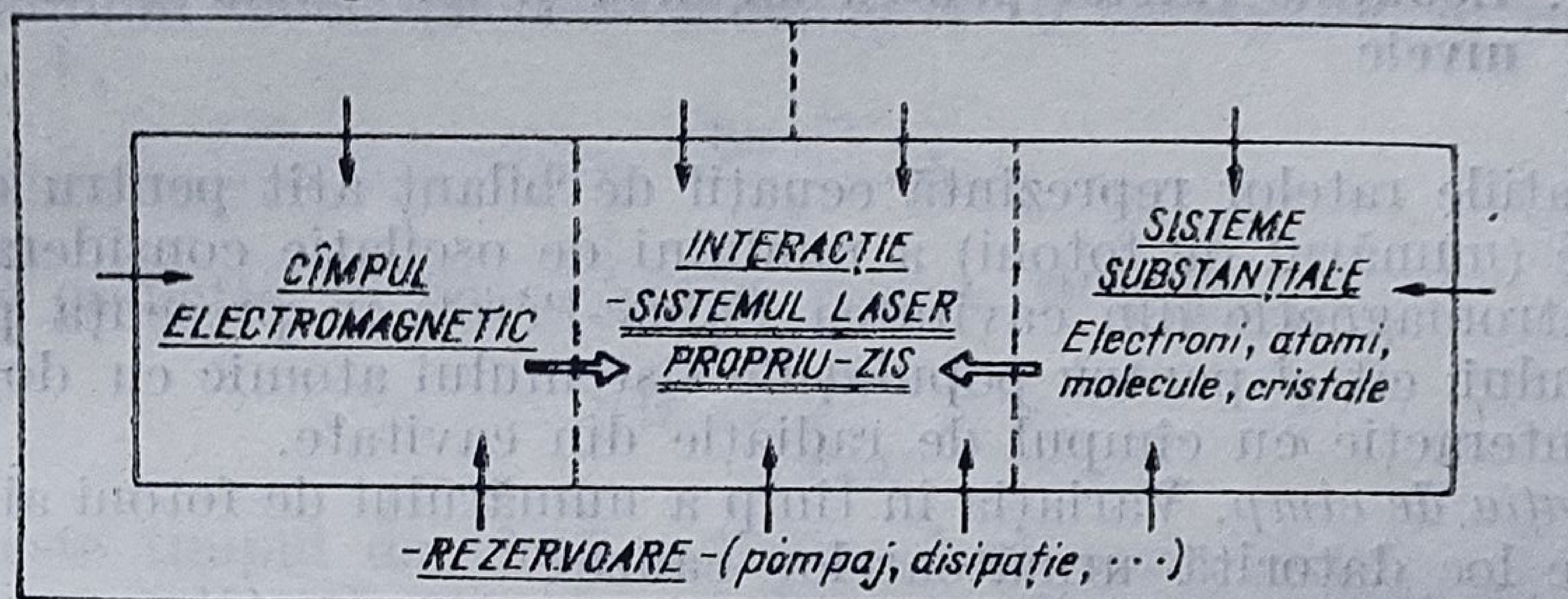


Fig. 4.1

În tabelul 4.1 se prezintă sintetic principalele „nivele" de analiză a proceselor laser, cu ajutorul teoriilor cuantică, semicuantică sau termodinamică precum și corelațiile dintre acestea și posibilitățile de descriere a fenomenelor fizice din sistemele laser oferite de fiecare în parte.

Tabelul 4.1

Teorii generale ale laserilor

Nivelul de analiză	Modele și formalisme	Posibilități de descriere
1	2	3
I. CUANTIC	— Ecuațiile cuantice Langevin — Ecuațiile matricei densitate — Ecuațiile generale Fokker-Planck	— Lărgimea liniei, fluctuațiile, coerența, statisticile de fotoni etc.
Mediere peste procesele de pompaj și relaxare		
II. SEMICUANTIC	— Pe baza formalismelor cuantice — Formalisme proprii (teoria lui Lamb etc.)	— Modificările frecvenței, efectele de modulație, impulsurile ultrascurte, ecoul fotonic, superradianța, generarea de armonici, alte efecte neliniare, dependența de timp a pulsațiilor populațiilor etc. . . .

(continuare tabel 4.1)

1	2	3
Neglijarea tuturor relaţiilor de fază		
III. TERMODINAMIC	— Pe baza formalismelor semicuantice — Formalisme proprii (bilanţuri pentru populaţii şi fotoni)	— Condiţia de prag, puterea de ieşire, impulsurile laser gigant, cascadele laser, competiţia şi coexistenţa modurilor de oscilaţie etc.

În cele ce urmează se va face o prezentare sistematică a principalelor formalisme care conduc la ecuaţiile ratelor pentru laseri şi se vor aplica ecuaţiile obţinute la studiul proceselor laser. Formalismele semicuantice şi cuantice ale laserilor vor fi abordate ulterior în capitolele 5 şi 6.

4.2. Ecuaţiile generale ale ratelor ca ecuaţii de bilanţ

4.2.1. Ecuaţiile ratelor pentru un mod şi un sistem atomic cu două nivele

Ecuaţiile ratelor reprezintă ecuaţii de bilanţ atît pentru densitatea de energie (numărul de fotoni) a modului de oscilaţie considerat al cîmpului electromagnetic din cavitatea Fabry-Pérot, în prezenţa pierderilor şi a cîştigului, cît şi pentru populaţiile sistemului atomic cu două nivele aflat în interacţie cu cîmpul de radiaţie din cavitate.

Ecuaţia de cîmp. Variaţia în timp a numărului de fotoni ai modului, dn/dt, are loc datorită următoarelor cauze:

— pierderile de fotoni prin oglinzile rezonatorului şi prin alte mecanisme (refracţie, împrăştiere, neomogenităţi), descrise prin termenul $-2\varkappa n$, unde $2\varkappa = 1/\tau_c$, τ_c fiind timpul de viaţă al fotonului în cavitate;

— emisia spontană determinată de termenul WN_2, unde W este rata de emisie spontană pentru un singur atom;

— emisia stimulată, determinată de termenul WN_2n, fiind proporţională cu densitatea de energie a modului;

— absorbţia, luată în considerare prin termenul $-N_1Wn$.

Prin urmare ecuaţia de cîmp are forma

$$\frac{dn}{dt} = W(N_2 - N_1)\, n + WN_2 - 2\varkappa n. \tag{4.1}$$

(Eucuaţiile ratelor pentru fotoni au fost scrise pentru prima dată de către Einstein, fiind aplicate la studiul laserilor de către H. Statz şi G. A. de Mars în 1960.)

Ecuaţiile de populaţii. Populaţiile celor două nivele N_1 şi N_2 (fig. 4.2) se modifică atît datorită emisiei stimulate şi absorbţiei cît şi datorită tranziţiilor cauzate de pompaj şi procesele necoerente de tipul: ciocniri de speţa a doua, tranziţii spontane neradiative şi radiative etc., luate în considerare prin ratele de tranziţie w_{12} sau w_{21}.

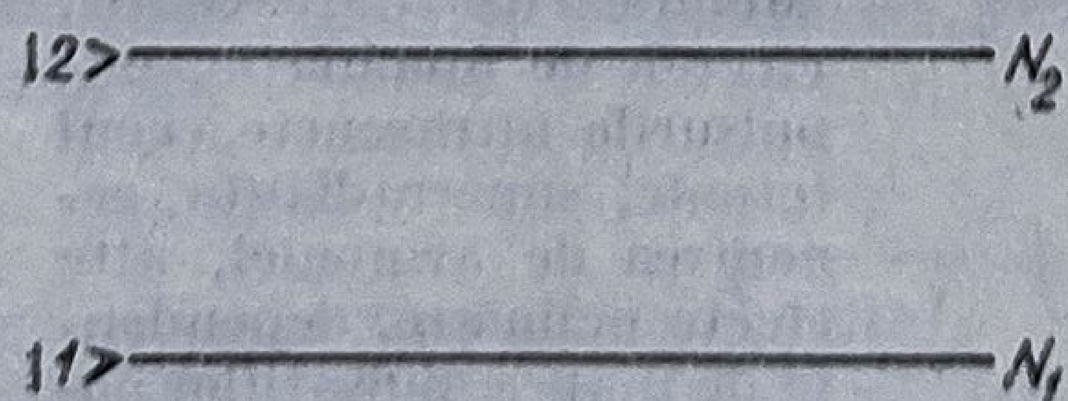


Fig. 4.2

Rezultă ecuațiile

$$\frac{\mathrm{d}N_2}{\mathrm{d}t} = -(N_2 - N_1)Wn - N_2 w_{21} + N_1 w_{12} \tag{4.2}$$

$$\frac{\mathrm{d}N_1}{\mathrm{d}t} = (N_2 - N_1)Wn + N_2 w_{21} - N_1 w_{12}. \tag{4.3}$$

Dacă se introduc notațiile $D = N_2 - N_1$ și $N_0 = N_1 + N_2$ din ecuațiile (4.2) și (4.3) se obține ecuația verificată de diferența de populație D,

$$\frac{\mathrm{d}D}{\mathrm{d}t} = \frac{D_0 - D}{T} - 2DWn \tag{4.4}$$

unde

$$\frac{1}{T} = w_{12} + w_{21} \text{ și } D_0 = \frac{w_{12} - w_{21}}{w_{12} + w_{21}}. \tag{4.5}$$

Condiția de ,,efect laser, $n > 0$ rezultă din (4.1) sub forma

$$WD > 2\varkappa. \tag{4.6}$$

Întrucît lărgimii liniei spectrale atomice $\Delta\nu$ îi corespund, în rezonatorul de volum V,

$$p = \frac{8\pi\nu^2 V}{c^3}\Delta\nu \tag{4.7}$$

moduri de oscilație, se poate utiliza pentru W expresia

$$W = \frac{1}{\tau_R p} \tag{4.8}$$

unde τ_R este timpul de viață radiativ al atomului (emit spontan $1/\tau_R$ atomi pe secundă). Ca urmare, condiția de efect laser (4.6) capătă forma

$$\frac{Dc^3}{8\tau_R \pi \nu^2 V \Delta\nu} > \frac{1}{\tau_c} \tag{4.9}$$

stabilită pentru prima dată în 1958 de către Schawlow și Townes. Din condiția (4.9) rezultă influența diferiților parametri (τ_c, $\Delta\nu$, D) asupra regimului optim de funcționare a laserului. Dacă se neglijează emisia spontană în ecuația (4.1) se obține soluția de regim staționar

$$\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}t} = 0; \quad \frac{\mathrm{d}D}{\mathrm{d}t} = 0; \tag{4.10}$$

$$n = \frac{D_0 W - 2\varkappa}{4TW\varkappa} \tag{4.11}$$

unde n reprezintă numărul de fotoni emiși coerent.

O altă formă a ecuațiilor ratelor, utilizată în unele lucrări, pentru un sistem atomic cu două nivele este următoarea :

$$\frac{\mathrm{d}N_2}{\mathrm{d}t} = W_p N_1 - W_i(N_2 - N_1) - \frac{N_2}{\tau_s} \tag{4.12}$$

$$\frac{\mathrm{d}N_1}{\mathrm{d}t} = -W_p N_1 + W_i(N_2 - N_1) + \frac{N_2}{\tau_s} \tag{4.13}$$

Fig. 4.3

unde $N_1 + N_2 = N_0$, semnificațiile diferitelor rate de tranziție fiind specificate în figura 4.3 și anume : W_p este rata de pompaj de pe nivelul $|1\rangle$ pe nivelul $|2\rangle$, W_i este rata de emisie indusă sau de absorbție, ambele fiind proporționale cu densitatea de fotoni iar $\tau_s = \tau_{21}$ este timpul de relaxare, datorat pierderilor prin emisie spontană. La ecuațiile (4.12) și (4.13) se adaugă ecuația pentru densitatea de energie în cavitate.

4.2.2. Ecuațiile ratelor pentru un sistem atomic cu trei nivele

Diagrama nivelelor energetice pentru laserul cu trei nivele este prezentată schematic în fig. 4.4.

Laserul cu trei nivele tipic este laserul cu rubin (Al_2O_3 cu impurități de Cr^{+++}) care emite o radiație cu lungimea de undă de 6943 Å.

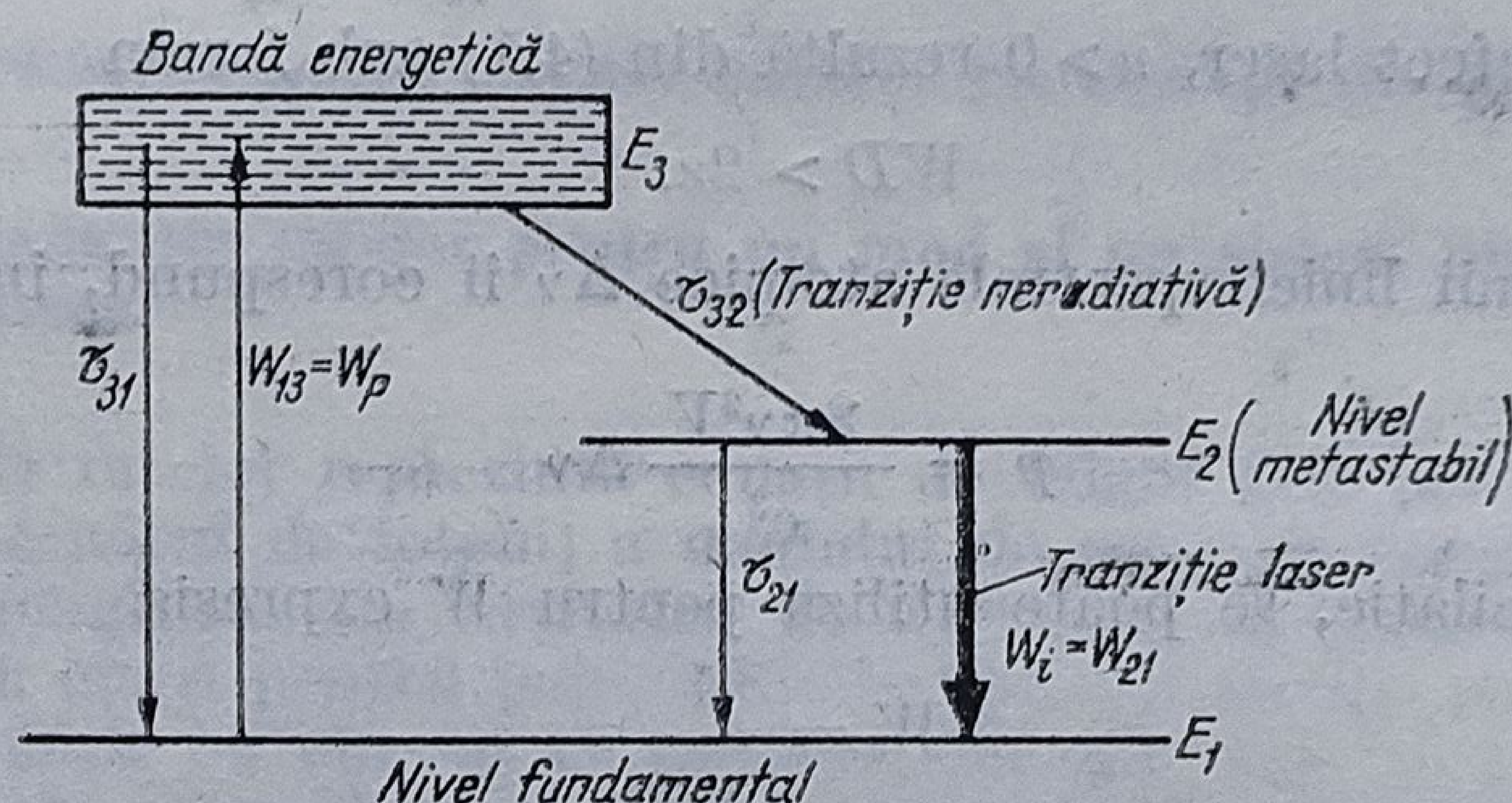


Fig. 4.4.

Ecuațiile ratelor pentru laserul cu trei nivele se scriu în conformitate cu notațiile din fig. 4.4 astfel

$$\frac{dN_3}{dt} = W_p(N_1 - N_3) - \frac{N_3}{\tau_{32}} - \frac{N_3}{\tau_{31}} \tag{4.15}$$

$$\frac{dN_2}{dt} = W_i(N_1 - N_2) - \frac{N_2}{\tau_{21}} + \frac{N_3}{\tau_{32}} \tag{4.16}$$

$$\frac{dN_1}{dt} = W_i(N_2 - N_1) + W_p(N_3 - N_1) + \frac{N_3}{\tau_{31}} + \frac{N_2}{\tau_{21}} \tag{4.17}$$

unde τ_{ij} sînt constantele de timp de relaxare spontană între nivelele i și j (timpul de relaxare τ_{31} este suficient de mare astfel încît termenul corespunzător se poate neglija).

Evident că, întrucît $N_1 + N_2 + N_3 = N_0$, există și dependența

$$\frac{dN_1}{dt} + \frac{dN_2}{dt} + \frac{dN_3}{dt} = 0. \tag{4.18}$$

La ecuațiile privind populațiile de mai sus trebuie adăugată și ecuația de cîmp

$$\frac{d\rho_E}{dt} = W_i(N_2 - N_1) + K\frac{N_2}{\tau_{21}} - \frac{\rho_E}{\tau_c} \tag{4.19}$$

unde ρ_E este densitatea de energie din cavitatea Fabry-Pérot. Termenii $W_i(N_2 - N_1)$ şi $K\frac{N_2}{\tau_{21}}$ ($K = c^3/8\pi\nu^2\Delta\nu V \ll 1$) determină energia primită de cîmp prin emisie stimulată respectiv prin fluorescenţă (K determină fracţia din radiaţia de fluorescenţă emisă în modul coerent care prezintă interes) iar ultimul termen ρ_E/τ_c ia în considerare pierderile în cavitatea Fabry-Pérot avînd constanta de timp τ_c. Întrucît coeficienţii de emisie stimulată W_i sînt dependenţi de densitatea de energie se poate explicita această dependenţă sub forma

$$W_i = B\left(\frac{\rho_E}{\Delta\nu}\right) = B_s\rho_E \tag{4.20}$$

unde B_s este coeficientul de emisie stimulată al lui Einstein definit în § 1.5.

Ca urmare, ecuaţiile ratelor pentru laserul cu trei nivele se pot scrie sub forma

$$\frac{dN_3}{dt} = W_p(N_1 - N_3) - \frac{N_3}{\tau_{32}} \tag{4.21}$$

$$\frac{dN_2}{dt} = B_s\rho_E(N_1 - N_2) + \frac{N_3}{\tau_{32}} - \frac{N_2}{\tau_{21}} \tag{4.22}$$

$$N_1 + N_2 + N_3 = N_0 \tag{4.23}$$

$$\frac{d\rho_E}{dt} = B_s\rho_E(N_2 - N_1) + K\frac{N_2}{\tau_{21}} - \frac{\rho_E}{\tau_c} \tag{4.24}$$

ecuaţia (4.23) fiind echivalent cu (4.17) în virtutea relaţiei (4.18).

Se observă că ecuaţiile ratelor sînt ecuaţii diferenţiale neliniare datorită produselor de forma $\rho_E N_i$.

Condiţiile de echilibru (regim staţionar) pentru laserul cu trei nivele pot fi stabilite utilizîndu-se ecuaţiile (4.21) — (4.24). Astfel, pentru o putere de pompaj scăzută (mult sub prag), ρ_E este puţin important încît pot fi neglijaţi termenii neliniari. Ca urmare, din condiţiile

$$\frac{dN_1}{dt} = \frac{dN_2}{dt} = \frac{dN_3}{dt} = \frac{d\rho_E}{dt} = 0 \tag{4.25}$$

se obţin pentru populaţii şi densitatea de energie soluţiile

$$\frac{N_3}{N_0} = \frac{\tau_{32}}{2\tau_{32} + (1/W_p) + \tau_{21}} \tag{4.26}$$

$$\frac{N_2}{N_0} = \frac{\tau_{21}}{2\tau_{32} + \tau_{21} + (1/W_p)} \tag{4.27}$$

$$\frac{N_1}{N_0} = \frac{\tau_{32} + (1/W_p)}{2\tau_{32} + \tau_{21} + (1/W_p)} \tag{4.28}$$

$$\rho_E = \frac{K(N_2/\tau_{21})}{(1/\tau_c) - B_s(N_2 - N_1)}. \tag{4.29}$$

O altă situaţie corespunde puterii de pompaj ridicate. Presupunem că este satisfăcută codiţia $\rho_E/\tau_c > K(N_3/\tau_{32})$ astfel încît la echilibru

$$\Delta N = \frac{1}{B_s \tau_c} \tag{4.30}$$

unde $\Delta N = D = N_2 - N_1$. În acest caz ecuaţiilor (4.26) — (4.29) le corespund ecuaţiile

$$\frac{N_1}{N_0} = \frac{[1-(1/N_0 B_s \tau_c)](1+W_p \tau_{32})}{3W_p \tau_{32}+2} \tag{4.31}$$

$$\frac{N_2}{N_0} = \frac{(1+W_p \tau_{32}) + (1/N_0 B_s \tau_c)(2W_p \tau_{32}+1)}{3W_p \tau_{32}+2} \tag{4.32}$$

$$\frac{N_3}{N_0} = W_p \tau_{32}\left[\frac{1-(1/N_0 B_s \tau_c)}{3W_p \tau_{32}+2}\right] \tag{4.33}$$

$$\frac{\rho_E}{N_0}\left(\frac{\tau_{21}}{\tau_c}\right) = \frac{[W_p(\tau_{21}-\tau_{32})-1]-(1/N_0 B_s \tau_c)[W_p(\tau_{21}-2\tau_{32})+1]}{3W_p \tau_{32}+2}. \tag{4.34}$$

Presupunînd că nivelul laser fluorescent are timpul de viaţă mult mai mare decît celelalte nivele (este metastabil) din ecuaţiile (4.31) — (4.34) rezultă pentru valoarea minimă a lui W_p condiţia

$$W_p \tau_{21} \geqslant \frac{NB_s \tau_c + 1}{NB_s \tau_c - 1}. \tag{4.35}$$

Pentru a se obţine dependenţa de timp a densităţii de energie ρ_E, trebuie integrată ecuaţia (4.34) în care se neglijează emisia spontană, astfel încît se obţine:

$$\frac{1}{\rho_E}\frac{d\rho_E}{dt} = \frac{1}{\tau_c}\left(\frac{\Delta N}{(\Delta N)_p} - 1\right) \tag{4.36}$$

unde $N_p = (N_2 - N_1)_p = \dfrac{1}{B_s \tau_c}$ este inversia de populaţie la pragul de oscilaţie. Dacă $\Delta N > (\Delta N)_p$, rezultă

$$\rho_E = \rho_{E_0} \exp\left\{\int \frac{dt}{\tau_c}\left[\frac{\Delta N}{(\Delta N)_p} - 1\right]\right\} \tag{4.37}$$

adică o creştere exponenţială a densităţii de energie.

Această ecuaţie este dificil de integrat întrucît nu este cunoscută dependentă de timp a lui ΔN. Se poate totuşi determina valoarea maximă a lui ρ_E care se obţine pentru $d\rho_E/dt = 0$, adică $\Delta N = (\Delta N)_p$, astfel încît ΔN este chiar valoarea de prag a inversiei de populaţie.

Observaţii. a) Ecuaţiile ratelor pentru un sistem cu trei nivele se reduc la ecuaţiile ratelor pentru un sistem cu două nivele dacă sînt îndeplinite condiţiile: constanta de timp τ_{32} este foarte mică, adică electronii care suferă tranziţii în banda de pompaj sînt transferaţi rapid pe nivelul laser superior, astfel că densitatea de electroni în banda de pompaj, rămîne scăzută; rata de emisie spontană din banda de pompaj, în starea fundamentală, descrisă de τ_{31} este neglijabilă. În acest caz ecuaţia (4.15) admite soluţia

$$N_3 \simeq N_1(W_p \tau_{32})[1 - \exp(-t/\tau_{32})] \simeq n_1(W_p \tau_{32}) \tag{4.38}$$

astfel încît cu condiția $\tau_{32} \ll \tau_{31}$, ecuațiile (4.16) și (4.17) se reduc la ecuațiile (4.12) și (4.13) dacă $\tau_s = \tau_{21}$.

Prin urmare, transferul electronilor din starea fundamentală pe nivelul laser superior este limitat de rata de pompaj W_p și nu de rata de relaxare neradiativă descrisă de τ_{32}.

b) Dacă se înlocuiesc constantele de timp de relaxare spontană τ_{ij} cu ratele de relaxare spontană w_{ij} în ecuațiile ratelor (4.15) — (4.17) și se ține seama de condițiile de regim staționar se obține pentru inversia de populație de echilibru expresia

$$(N_2 - N_1) = N \frac{W_p[\eta(w_{32} + w_{31}) - w_{21}] - w_{31}(w_{32} - w_{31})}{(W_p + w_{32} + w_{31})(2W_i + w_{21}) + W_p(W_i + w_{32} + w_{31})} \quad (4.39)$$

unde $\eta = w_{32}/(w_{32} + w_{31})$.

Dacă se ține seama de condiția

$$w_{31} + w_{32} \gg w_{21} \quad (4.40)$$

satisfăcută în cele mai multe materiale laser și se consideră un pompaj care nu saturează tranziția de pompaj ($w_{32} \gg W_p$) relația (4.39) se simplifică astfel

$$N_2 - N_1 = N \frac{W_p\eta - w_{21}}{2W_i + w_{21} + W_p\eta}. \quad (4.41)$$

Sub pragul de oscilație, $W_i = 0$, astfel că rezultă o dependență liniară a inversiei de populație de pompaj. Peste pragul de oscilație inversia de populație nu poate depăși o valoare critică ΔN_c, întrucît numărul de fotoni ar crește în timp, astfel încît trebuie admis că W_i crește odată cu atingerea pragului. Se obține [81]

$$W_i = \frac{N_0}{2\Delta N_c}(W_p\eta - w_{21}) - \frac{1}{2}(W_p\eta + w_{21}) \quad (4.42)$$

unde din considerente fenomenologice rezultă pentru laserul cu două nivele

$$\Delta N_c = \frac{8\pi\nu^2\tau_s}{c^3\tau_c g(0)} \quad (4.43)$$

$g(0)$ fiind determinat de funcția lorentziană a liniei $g(\nu - \nu_0)$. Condiția (4.43) este echivalentă cu condiția de amorsare a oscilației (4.9) a lui Schawlow și Townes. Cu ajutorul expresiei (4.42) se poate calcula puterea de oscilație totală conform relației

$$P = Vh\nu(N_2 - N_1)W_i. \quad (4.44)$$

Expresia (4.42) a ratei tranziției induse W_i se poate stabili și fenomenologic utilizîndu-se expresia (4.44) și ținîndu-se seama de relațiile: $N_2 - N = \Delta N_c$, $N_3 \ll N_2$, $N_1 + N_2 + N_3 = N_0$, astfel încît $N_1 = \frac{1}{2}(N_0 - \Delta N_c)$ și $N_2 = \frac{1}{2}(N_0 + \Delta N_c)$; numărul de atomi pompați pe unitatea de timp și pe unitatea de volum este W_pN_1 iar numărul de atomi care populează nivelul laser superior este $W_pN_1\eta$, tranzițiile spontane de pe nivelul 2 pe nivelul 1 fiind date de termenul N_2w_{21} etc.

4.2.3. Ecuațiile ratelor pentru un sistem atomic cu patru nivele

Diagrama nivelelor energetice pentru laserul cu patru nivele este prezentată schematic în fig. 4.5.

Dezavantajul principal al laserilor cu trei nivele constă în faptul că nivelul inferior care participă la tranziția laser este nivelul fundamental, ceea ce face ca inversia de populație să se obțină greu. Acest neajuns este înlăturat la laserul cu patru nivele, unde prin emisie stimulată atomii trec

pe un nivel intermediar, care este în general foarte puțin populat, astfel încît inversia de populație se realizează mai ușor.

Laserii cu patru nivele reprezentativi sînt laserul cu ioni de neodim introduși ca impurități în cristalul de $Y_2Al_2O_{12}$ și laserul cu sticlă dopată cu neodim.

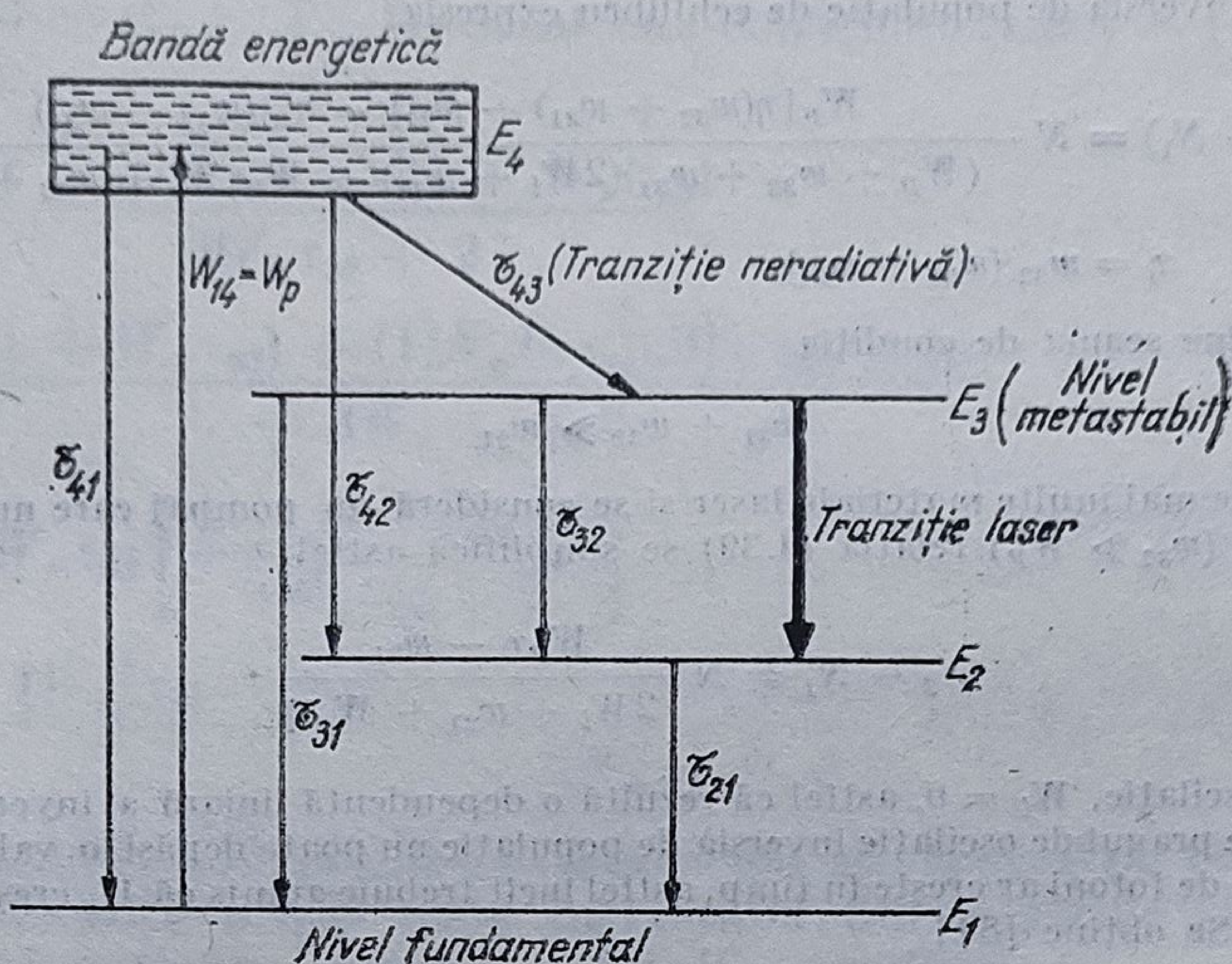


Fig. 4.5

Ecuațiile ratelor pentru laserul cu patru nivele, se scriu prin analogie cu ecuațiile (4.15) — (4.17) astfel

$$\frac{dN_4}{dt} = W_p(N_1 - N_4) - \frac{N_4}{\tau_{43}} - \frac{N_4}{\tau_{42}} - \frac{N_4}{\tau_{41}} \tag{4.45}$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \frac{N_4}{\tau_{43}} - \frac{N_3}{\tau_{32}} - W_i(N_3 - N_2) - \frac{N_{31}}{\tau_{31}} \tag{4.46}$$

$$\frac{dN_2}{dt} = W_i(N_3 - N_2) + \frac{N_3}{\tau_{32}} - \frac{N_2}{\tau_{21}} + \frac{N_4}{\tau_{42}} \tag{4.47}$$

$$\frac{dN_1}{dt} = W_p(N_4 - N_1) + \frac{N_4}{\tau_{21}} + \frac{N_3}{\tau_{31}} + \frac{N_2}{\tau_{21}} \tag{4.48}$$

$$\frac{d\rho_E}{dt} = W_i(N_3 - N_2) + K\frac{N_3}{\tau_{32}} - \frac{\rho_E}{\tau_c}. \tag{4.49}$$

Se poate arăta că timpii de relaxare τ_{42} și τ_{31} se pot neglija. În plus se admite că nivelul laser fluorescent are timpul de viață mult mai mare decît al celorlalte nivele (este metastabil).

În continuare, ecuațiile ratelor se pot transforma și analiza conform modelului dezvoltat pentru laserul cu trei nivele.

Comparativ cu acesta se ajunge la următoarele concluzii:

— în condiții de echilibru, regimul de oscilație al dispozitivului laser este determinat de o putere de pompaj mult mai mică pentru laserul

cu patru nivele în raport cu laserul cu trei nivele, presupunînd că timpii de relaxare sînt egali;

— nivelul laser inferior este „aproape populat" pentru laserul cu trei nivele spre deosebire de laserul cu patru nivele unde nivelul laser inferior este „aproape nepopulat";

— inversia de populaţie are un nivel aproximativ constant pentru laserul cu trei nivele şi este proporţională cu puterea pentru laserul cu patru nivele;

— de asemenea, se arată că eficienţa de ciocnire este mult mai mare pentru sistemele cu patru nivele, comparativ cu sistemele cu trei nivele.

Ca şi în cazul laserului cu trei nivele, în anumite condiţii, se poate utiliza şi pentru laserul cu patru nivele aproximaţia laserului cu două nivele.

Astfel: se neglijează tranziţiile directe dintre banda de pompaj şi nivelul laser superior, se neglijează emisia spontană din banda de pompaj şi se presupune rata de relaxare w_{43} dintre banda de pompaj şi nivelul laser superior mult mai mare decît rata de pompaj astfel încît $N_4 \ll N_1$. Prin urmare, transferul electronilor din banda de pompaj pe nivelul laser superior este presupus practic instantaneu.

Pentru a fi operative avantajele laserului cu patru nivele trebuie ca populaţia N_2 a nivelului laser inferior să rămînă foarte mică, de unde rezultă condiţia suplimentară ca timpul de relaxare τ_{21} să fie foarte scăzut. Totodată este necesară condiţia de echilibru: $\mathrm{d}N_1/\mathrm{d}t=0$. Cu aceste condiţii ecuaţiile ratelor pentru laserul cu patru nivele capătă forma

$$\frac{\mathrm{d}N_3}{\mathrm{d}t} = \frac{N_2}{\tau_{21}} - W_i(N_3 - N_2) - \frac{N_3}{\tau_{32}} \tag{4.50}$$

$$\frac{\mathrm{d}N_2}{\mathrm{d}t} = \frac{N_2}{\tau_{21}} + W_i(N_3 - N_2) + \frac{N_3}{\tau_{32}}. \tag{4.51}$$

Ecuaţiile (4.50) şi (4.51) sînt identice cu (4.12) — (4.13) dacă $W_p = 1/\tau_{21}$ şi $\tau_s = \tau_{32}$. Se observă că timpul de relaxare spontană τ_{21} determină o rată echivalentă de pompaj $W_p = 1/\tau_{21}$, astfel încît pompajul nu este descris direct de tranziţiile de pe nivelul fundamental în banda de pompaj. Această constantă de timp va limita prin urmare şi popularea nivelului laser superior.

4.2.4. Ecuaţiile generale ale ratelor pentru mai multe moduri şi un sistem cu mai multe nivele

În cazul general, în scrierea ecuaţiilor ratelor trebuie să se ţină seama de existenţa mai multor moduri, avînd o distribuţie spaţială dată, care interacţionează cu atomii mediului activ cu mai multe nivele, a căror distribuţie în spaţiu trebuie, de asemenea, specificată.

În continuare cele M moduri ale cavităţii vor fi specificate cu indicele r, iar cele P nivele energetice ale atomilor vor fi specificate de indicele s

În consecinţă, ecuaţiile (4.1) — (4.3) pentru laserul cu două nivele se pot generaliza astfel [81]

— *ecuația de cîmp*

$$\frac{dn_r}{dt} = -2\varkappa_r n_r + \underbrace{n_r \sum_s W_{mn,r,s}(N_m - N_n)_s}_{\text{emisie stimulată}} + \underbrace{\sum_s W_{mn,r,s} N_{n,s}}_{\text{emisie spontană}} \quad (4.52)$$

— *ecuațiile de populații:*

— pentru nivelele între care are loc tranziția laser

$$\frac{dN_{m,s}}{dt} = \sum_{l \neq m} w_{lm,s} N_{l,s} - N_{m,s} \sum_{l \neq m} w_{ml,s} - \sum_r n_r W_{mn,r,s}(N_m - N_n)_s \quad (4.53)$$

$$\frac{dN_{n,s}}{dt} = \sum_{l \neq n} w_{lm,s} N_{l,s} - N_{n,s} \sum_{l \neq n} w_{nl,s} + \sum_r W_{mn,r,s}(N_m - N_n)_s \quad (4.54)$$

— pentru alte nivele utilizate pentru pompaj

$$\frac{dN_{j,s}}{dt} = \sum_{l \neq j} w_{lj,s} N_{l,s} - N_{j,s} \sum_{l \neq j} w_{jl,s}. \quad (4.55)$$

Faptul că ecuațiile (4.53) — (4.55) nu sînt independente este exprimat de condiția

$$\sum_{l=1}^{p} N_{l,s} = \text{const.} \quad (4.56)$$

În relațiile de mai sus, termenul $-2\varkappa_r n_r$ reprezintă rata de pierderi a modului r, $N_{m,s}$ este numărul de ocupare al nivelului laser superior, rata de emisie pentru un singur atom în aproximația de dipol electric fiind dată de relația

$$W_{mn,r,s} = \frac{2\gamma}{\gamma^2 + (\Omega_s - \Omega_r)^2} |g_{sr}|^2 \quad (4.57)$$

unde

$$g_{sr} = i\sqrt{\frac{2\pi\omega_r}{h}}\, \mathbf{e}_r \mathbf{d}_{nm} U_r(\mathbf{x}_s) \quad (4.58)$$

sau

$$|g_{sr}|^2 = g^2 V |U_r(\mathbf{x}_s)|^2. \quad (4.59)$$

Mărimile din expresia lui $W_{mn,r,s}$ au semnificațiile următoare: $U_r(\mathbf{x}_s)$ este amplitudinea modului în punctul $\mathbf{x}_s$, V este volumul cavității, $\mathbf{d}_{nm}$ elementul de matrice al tranziției de dipol electric, $\mathbf{e}_r$ versorul direcției de polarizare a modului, ω_r frecvența modului, Ω_s este frecvența de tranziție a atomului s, iar γ semilărgimea liniei spectrale lorentziene ($\gamma = 1/T_2 = \Delta\omega_L$). Expresia (4.57) reprezintă un rezultat al teoriei semicuantice care poate fi de asemenea utilizată pentru obținerea ecuațiilor ratelor (tabelul 4.1).

Dacă se neglijează emisia spontană în ecuația (4.52), cu condiția de regim staționar

$$\frac{dn_r}{dt} = \frac{dN_{l,s}}{dt} = 0 \quad (4.60)$$

se obţine expresia inversiei de populaţie

$$\Delta N_{mn, s} = \frac{A_s}{B_s + \left(\sum_{r}^{M} n_r W_{mn, r, s} \right) C_s} \tag{4.61}$$

unde A_s, B_s, C_s sînt factori independenţi de n_r.

Pentru a determina numărul de fotoni pe mod funcţie de pompaj, la regim staţionar, se introduce rezultatul (4.61) în ecuaţia (4.52) obţinîndu-se un sistem de M ecuaţii avînd ca necunoscute mărimile $n_r > 0$.

Prin particularizarea ecuaţiilor de mai sus se obţin rezultatele cunoscute pentru laserul cu două, trei sau patru nivele.

4.3. Ecuaţiile cuplate de amplitudine şi ecuaţiile ratelor

4.3.1 Ecuaţiile cuplate de amplitudine în regim tranzitoriu. Posibilităţi de amplificare

Studiul tranziţiilor de dipol electric se poate face atît în regim staţionar cît şi în regim tranzitoriu. Astfel, fenomenele de absorbţie, dispersie şi saturaţie au fost analizate pentru regimul staţionar, ecuaţiile de mişcare pentru tranziţiile de dipol electric fiind scrise în aceste condiţii.

În cele ce urmează vor fi stabilite ecuaţiile cuplate de amplitudine pentru regimul tranzitoriu, care joacă, de asemenea, un rol important în procesele laser. Îe acest scop se presupune pentru simplificare o variaţie lentă în timp a coeficienţilor de regim staţionar, ipoteză în concordanţă cu situaţiile fizice care ne interesează. Un astfel de regim *cvasistaţionar* este determinat de intervalele temporale mari în care se face transferul de energie în raport cu perioada de osilaţie şi de intervalele spaţiale mari în care au loc variaţii semnificative ale intensităţii cîmpului, în raport cu lungimea de undă a radiaţiei. Se obţine un sistem neliniar de ecuaţii algebrice (în cazul undelor progresive) sau un sistem neliniar de ecuaţii diferenţiale de ordinul I (în cazul cîmpului din cavităţile rezonante) care constituie ecuaţiile cuplate de amplitudine, deosebit de utile pentru studiul tranziţiilor de dipol electric.

a) *Cazul undelor progresive.* Să considerăm un sistem atomic cu două nivele avînd energiile E_1 şi E_2 şi populaţiile N_1 respectiv N_2. Să presupunem că sub acţiunea unui cîmp optic incident, rezonant, se produce în mediul aflat la echilibru inversia de populaţie

$$N^e = N_2^e - N_1^e > 0. \tag{4.62}$$

O astfel de stare fizică a sistemului este caracterizată de o absorbţie negativă, care va determina amplificarea radiaţiei incidente.

Interacţia cîmp-substanţă în cazul undelor progresive este descrisă de ecuaţiile (§ 1.6)

$$\ddot{\mathbf{P}} + \frac{2}{T_2}\dot{\mathbf{P}} + \Omega^2\mathbf{P} = -\frac{2\Omega}{\hbar} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} N\mathbf{E} \quad (4.63)$$

$$\frac{\partial N}{\partial t} + \frac{N - N^e}{T_1} = \frac{2}{\hbar\Omega}\dot{\mathbf{P}}\mathbf{E} \quad (4.64)$$

$$\nabla\times(\nabla\times\mathbf{E}) + \frac{n\gamma}{c}\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t} + \frac{n^2}{c^2}\frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0\frac{\partial^2\mathbf{P}}{\partial t^2}. \quad (4.65)$$

Soluţiile de regim cvasistaţionar ale ecuaţiilor de mai sus pot fi considerate de forma

$$\mathbf{P} = \frac{1}{2}\mathbf{P}_0(z)\exp[\mathrm{i}(\Omega t - kz)] + \mathrm{c.c.} \quad (4.66)$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2}\mathbf{E}_0(z)\exp[\mathrm{i}(\Omega t - kz)] + \mathrm{c.c.} \quad (4.67)$$

$$N = N(z) \quad (4.68)$$

unde $\mathbf{P}_0(z)$ şi $\mathbf{E}_0(z)$ sînt amplitudini complexe, staţionare în timp, lent variabile după direcţia de propagare z, iar variaţiile temporare ale lui $N(z)$ se neglijează.

Înlocuind soluţiile (4.66) — (4.68) în ecuaţiile (4.63) — (4.65) se b ţin ecuaţiile cuplate de amplitudine sub forma

$$\mathbf{P}_0(z) = \frac{\mathrm{i}T_2}{\hbar} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} N\mathbf{E}_0(z) \quad (4.69)$$

$$\frac{N - N^e}{T_1} = \frac{\mathrm{i}}{2\hbar}[\mathbf{P}_0(z)\mathbf{E}_0(z)^* - P_0(z)^*\mathbf{E}_0(z)] \quad (4.70)$$

$$2\mathrm{i}k\frac{\partial\mathbf{E}_0(z)}{\partial z} + \mathrm{i}\gamma k\mathbf{E}_0(z) = \Omega^2\mu_0\mathbf{P}_0(z). \quad (4.71)$$

Sistemul de ecuaţii neliniare algebrice (4.69) — (4.71) constituie *ecuaţiile cuplate de amplitudine.* Soluţiile acestui sistem determină modul de variaţie a amplitudinilor mărimilor : polarizare, intensitate a cîmpului electric, diferenţă de populaţie, funcţie de distanţa de interacţie, considerată în direcţia z.

În cele ce urmează ne interesează modul de variaţie al intensităţi

$$I(z) = \frac{n\varepsilon_0 c|\mathbf{E}_0(z)|^2}{2} \quad (4.72)$$

funcţie de parametrii sistemului cuplat substanţă-cîmp.

Eliminînd polarizarea $P_0(z)$ între ecuaţiile (4.69) şi (4.71) se obţine ecuaţia

$$\frac{\partial}{\partial t}|\mathbf{E}_0(z)|^2 + \gamma|\mathbf{E}_0(z)|^2 = \frac{\Omega T_2}{\hbar\varepsilon_0 cn} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} N(z)|\mathbf{E}_0(z)|^2 \quad (4.73)$$

unde

$$N(z) = \frac{N^e}{1 + (T_1 T_2/\hbar) L |\mathbf{d}_{12}|^2/3) |\mathbf{E}_0(z)|^2}. \tag{4.74}$$

Mărimea $|\mathbf{E}_0(z)|^2$ este proporțională cu densitatea medie de energie a undei, astfel că ecuația (4.73) reprezintă *ecuația ratelor*, pentru energia transferată cîmpului de către mediu funcție de distanță. De observat, că spre deosebire de ecuațiile cuplate de amplitudine, ecuația ratelor nu conține informația de fază deoarece este luat în cosiderare numai $|\mathbf{E}_0(z)|^2$. Ținîndu-se seama de expresia (4.72), ecuația (4.73) se poate scrie sub forma

$$\frac{\mathrm{d}I}{\mathrm{d}z} = \left[g_0 \frac{I(0) + I_{sat}}{I + I_{sat}} - \gamma \right] I = g(I) I \tag{4.75}$$

unde

$$g_0 = \frac{\hbar \Omega N^e}{2T_1} \frac{1}{I(0) + I_{sat}} \tag{4.76}$$

este cîștigul la planul de intrare, iar $g(I)$ este *coeficientul de cîștig.*

Funcție de valorile lui g_0 se pun în evidență trei regiuni care prezintă interes privind dependența $I(z)$:

i) Dacă $g_0 > \gamma$ (cîștigul este ridicat), cîștigul total $g(I)$ este pozitiv și crește exponențial cu parcursul z. Datorită însă descreșterii primului termen din paranteză, apare o saturație după o anumită distanță, cînd cîștigul echilibrează pierderile.

ii) Dacă $\gamma < g_0 < \frac{\gamma(I + I_{sat})}{I(0) + I_{sat}}$ (cîștigul este mediu), cîștigul total $g(E)$ este negativ la planul de intrare și începe să scadă exponențial. Pe măsură că I scade, primul termen din paranteză crește, se ajunge la un echilibru al pierderilor cu cîștigul și unda trece neatenuată prin mediu.

iii) În sfîrșit, pentru $g_0 < \gamma I_{sat}/[I(0) + I_{sat}]$ (cîștigul este scăzut), $g(I)$ este negativ la planul de intrare și rămîne negativ în continuare, astfel că $I(z) \to 0$.

b) *Cazul cîmpului din cavitățile rezonante.* Interacția cîmp — substanță în cazul cavităților rezonante este descrisă de soluții ale ecuațiilor de mișcare ale tranzițiilor de dipol electric ce sînt staționare în spațiu dar variabile în timp. Fie ecuațiile de mișcare standard (§.1.6)

$$\ddot{\mathbf{P}} + \frac{2}{T_2}\dot{\mathbf{P}} + \Omega^2 \mathbf{P} = -\frac{2\Omega}{\hbar} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} N \mathbf{E} \tag{4.77}$$

$$\dot{N} + \frac{N - N^e}{T_1} = \frac{2}{\hbar\Omega} \dot{\mathbf{P}}\mathbf{E} \tag{4.78}$$

$$\ddot{\mathbf{E}} + \frac{1}{\tau_c}\dot{\mathbf{E}} + \omega_c^2 \mathbf{E} = -\frac{1}{\varepsilon}\ddot{\mathbf{P}} \tag{4.79}$$

care descriu oscilatorii cuplaţi, polarizare-cîmpul din cavitate. Ecuaţiile cuplate de amplitudine, rezultă căutînd pentru sistemul de mai sus soluţii de forma

$$\mathbf{P} = \frac{1}{2}\mathbf{P}_0(t)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Omega t} + \mathrm{c.c.} \tag{4.80}$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2}\mathbf{E}_0(t)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Omega t} + \mathrm{c.c.} \tag{4.81}$$

cu condiţiile

$$\omega_c \simeq \Omega = \omega \text{ şi } 2/T_2 \ll \Omega,\ 1/\tau_c \ll \Omega. \tag{4.82}$$

Se obţin ecuaţiile cuplate de amplitudine

$$\dot{\mathbf{P}}_0 + \frac{1}{T_2}\mathbf{P}_0 = \frac{\mathrm{i}}{\hbar}L\frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3}N\mathbf{E}_0 \tag{4.83}$$

$$\dot{\mathbf{E}}_0 + \frac{1}{2\tau_c}\mathbf{E}_0 = -\frac{\mathrm{i}\Omega}{2\varepsilon}\mathbf{P}_0 \tag{4.84}$$

$$\dot{N} + \frac{N - N^e}{T1} = \frac{\mathrm{i}}{2\hbar}(\mathbf{P}_0\mathbf{E}_0^* - \mathbf{P}_0^*\mathbf{E}_0). \tag{4.85}$$

(S-au considerat, de asemenea, condiţiile $\dot{\mathbf{P}}_0 \ll \Omega\mathbf{P}_0$ şi $\dot{\mathbf{E}}_0 \ll \Omega\,\mathbf{E}_0$, deoarece amplitudinile variază lent în raport cu frecvenţa de oscilaţie.)

Atunci cînd frecvenţa de rezonanţă a tranziţiei Ω (a oscilatorului polarizare) diferă de frecvenţa de rezonanţă a cavităţii ω_c (a cîmpului din cavitate) sistemul cuplat polarizare-cîmp va oscila pe o frecvenţă situată între cele două frecvenţe Ω şi ω_c avînd expresia

$$\omega = \sqrt{\frac{T_2\Omega^2 - 2\omega_c^2\tau_c}{T_2 - 2\tau_c}}. \tag{4.86}$$

Efectul corespunzător, cunoscut sub numele de *„tîrîrea frecvenţei“* va fi analizat ulterior.

În cazul laserilor, unde $1/\tau_c \ll 2/T_2$, adică lărgimea liniei de rezonanţă a cavităţii este mult mai mică decît cea a tranziţiei, se poate scrie

$$\omega - \omega_c \simeq (\Omega - \omega_c)\frac{1/\tau_c}{2/T_2} \simeq (\Omega - \omega_c)\frac{Q_t}{Q_c} \tag{4.87}$$

unde $Q_t = \dfrac{\Omega T_2}{2}$ şi $Q_c = \omega_c\tau_c$ reprezintă factorii de calitate pentru tranziţie respectiv pentru cavitate (fig. 4.6).

— *În cazul maserilor*, unde $2/T_2 < \dfrac{1}{\tau_c}$, adică lărgimea liniei de rezonanță a cavității este mult mai mare decît cea a tranziției, se poate scrie (fig. 4.7)

$$\omega = \Omega \simeq (\omega_c - \Omega)\frac{2/T_2}{1/\tau_c} \simeq (\omega_c - \Omega)\frac{Q_c}{Q_t} \qquad (4.88)$$

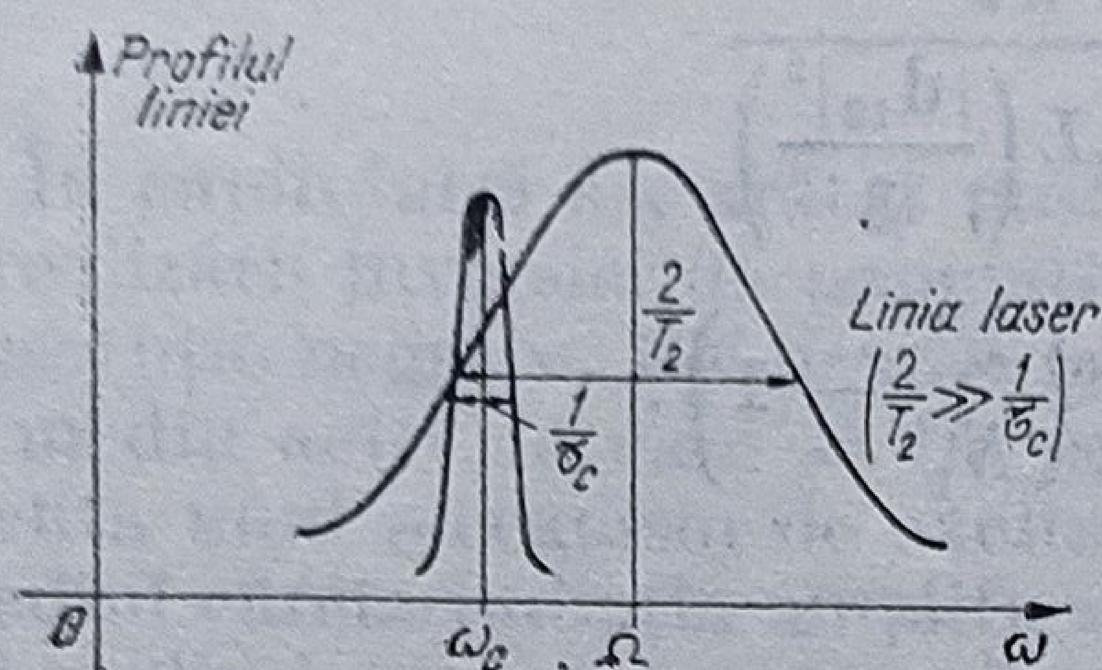


Fig. 4.6

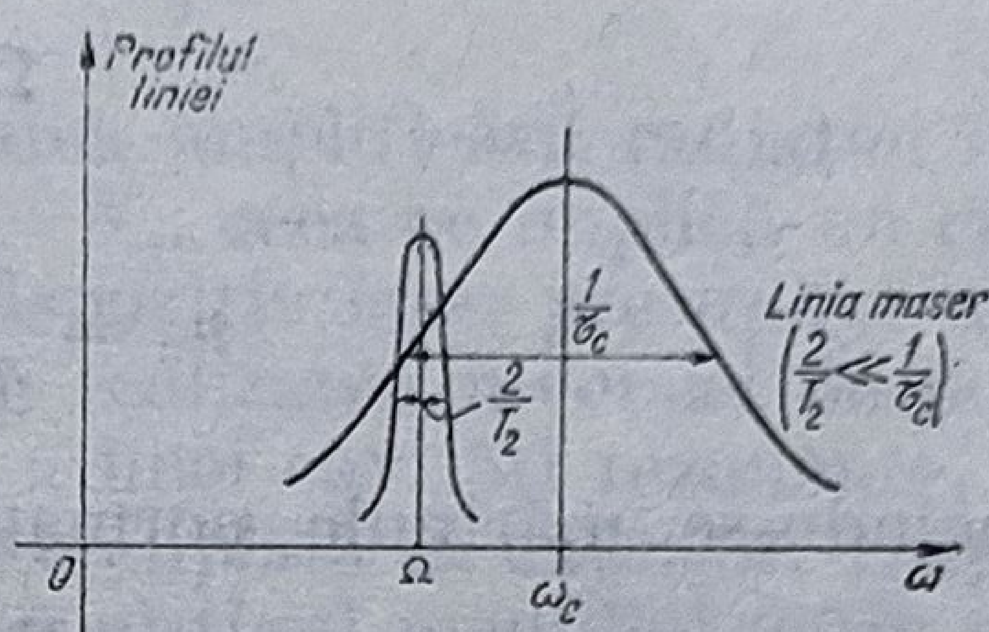


Fig. 4.7

4.3.2. Ecuațiile ratelor pentru laseri și maseri

Ecuațiile cuplate de amplitudine se pot simplifica în continuare, dacă se renunță la informația de fază, obținîndu-se ecuațiile ratelor.

a) În cazul laserilor, ținîndu-se seama de condiția $\dfrac{2}{T_2} \gg \dfrac{1}{\tau_c}$ astfel că $\dfrac{\partial}{\partial t} \ll \dfrac{2}{T_2}$, $\dot{\mathbf{P}}_0$ poate fi neglijat în ecuația polarizării (4.83). Exprimînd polarizarea $\mathbf{P}_0$ funcție de $\mathbf{E}_0$ sub forma

$$\mathbf{P}_0 = \frac{iT_2}{\hbar} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} N\mathbf{E}_0 \qquad (4.89)$$

ecuațiile de populații și cîmp devin

$$\dot{N} + \frac{N - N^e}{T_1} = -\frac{T_2}{\hbar^2} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} N|\mathbf{E}_0|^2 \qquad (4.90)$$

$$|\dot{\mathbf{E}}_0|^2 + \frac{1}{\tau_c}|\mathbf{E}_0|^2 = \frac{\Omega T_2}{\hbar\varepsilon} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} N|\mathbf{E}_0|^2. \qquad (4.91)$$

Introducîndu-se „densitatea“ de fotoni

$$n = \varepsilon\frac{|\mathbf{E}_0|^2}{2\hbar\Omega} \qquad (4.92)$$

ecuațiile (4.90) și (4.91) se transformă astfel

$$\dot{N} + \frac{N - N^e}{T_1} = -\frac{2\Omega T_2}{\hbar\varepsilon} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} Nn \qquad (4.93)$$

$$\dot{n} + \frac{n}{\tau_c} = \frac{\Omega T_2}{\hbar\varepsilon} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} Nn. \qquad (4.94)$$

Ecuațiile (4.93) și (4.94) se numesc *ecuațiile ratelor* deoarece evidențiază ratele sub care se face schimbul de energie 'ntre c'mpul cavității și mediu.

Soluția de regim staționar a ecuațiilor ratelor se obține pentru: $\frac{\partial N}{\partial t} = \frac{\partial n}{\partial t} = 0$. Rezultă

$$N_0 = \frac{\hbar \varepsilon}{\Omega \tau_c T_2 L \left(\frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} \right)} \tag{4.95}$$

$$n_0 = \frac{\tau_c}{T_1} \frac{N_0}{2} \left(\frac{N^e}{N_0} - 1 \right). \tag{4.96}$$

Introduc'ndu-se mărimile normate

$$N_n = \frac{N}{N_0} \quad \text{și} \quad n_n = \frac{n}{n_0}, \tag{4.97}$$

ecuațiile ratelor capătă forma standard

$$\dot{N}_n + \frac{N_n - N_n^e}{T_1} = \frac{1 - N_n^e}{T_1} N_n n_n \tag{4.98}$$

$$\dot{n}_n + \frac{n_n}{\tau_c} = \frac{1}{\tau_c} N_n n_n. \tag{4.99}$$

b) În cazul maserilor țin'ndu-se seama de condiția $\frac{2}{T_2} \ll \frac{1}{\tau_c}$, astfel că $\frac{\partial}{\partial t} \ll \frac{1}{\tau_c}$, $\dot{\mathbf{E}}_0$ poate fi neglijat 'n ecuația de c'mp (4.84).

Exprimînd polarizarea $\mathbf{P}_0$ funcție de cîmpul $\mathbf{E}_0$ sub forma

$$\mathbf{P}_0 = \frac{\mathrm{i} \varepsilon}{\tau_c \Omega} \mathbf{E}_0 \tag{4.100}$$

ecuațiile de populații și cîmp devin

$$\dot{N} + \frac{N - N^e}{T_1} = -\frac{2}{\tau_c} n \tag{4.101}$$

$$\dot{n} + \frac{2}{T_2} n = \frac{2 \Omega \tau_c}{\hbar \varepsilon} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} N n. \tag{4.102}$$

Introducîndu-se mărimile normate (4.97) se obțin ecuațiile ratelor pentru maseri sub formă standard

$$\dot{N}_n + \frac{N_n - N_n^e}{T_1} = -\frac{N_n^e - 1}{T_1} n_n \tag{4.103}$$

$$\dot{n}_n + \frac{2}{T_2} n_n = \frac{2}{T_2} N_n n_n. \tag{4.104}$$

Se observă că în cazul maserilor, în ecuația de fotoni intervine constanta de timp T_2 în loc de τ_c în cazul laserilor. De asemenea, în membrul drept, în ecuația de populații apare în cazul maserilor densitatea de fotoni n_n în loc de produsul $N_n \cdot n_n$ în cazul laserilor.

4.4. Dinamica proceselor laser

În capitolul 6 s-a arătat posibilitatea amplificării radiației în condițiile realizării inversiei de populație $N_2 > N_1$, ceea ce implică un coeficient de absorbție negativ. Realizarea unui dispozitiv laser presupune utilizarea unui mediu activ în care să fie posibilă realizarea inversiei de populație, existența unui mecanism de excitare și a unei cavități rezonante, prin intermediul căreia radiația amplificată este cuplată în exterior. Dispozitivul astfel realizat va începe să oscileze dacă cîștigul mediului activ este mai mare decît pierderile cavității, ceea ce este echivalent cu o condiție „de prag" pentru nivelul inversiei de populație.

4.4.1. Pragul de oscilație și puterea de pompaj

Ecuațiile normate ale ratelor pentru laseri stabilite în § 4.3.2 au forma (4.98) și (4.99).

Sistemul atomic analizat este situat într-o cavitate rezonantă optică avînd un factor de calitate Q determinat de pierderile fracționare de energie pe tranzit ale radiației din rezonator.

Se poate arăta că $\Delta\omega_c$ corespunde în cazul tranzițiilor optice condiției $\Delta\omega_c \ll \Delta\omega_L$, în care au fost stabilite ecuațiile ratelor.

De observat că în deducerea ecuațiilor ratelor nu a fost luată în considerare emisia spontană. Pentru simplificarea analizei, în continuare se presupune că există radiație într-un singur mod de oscilație al cavității rezonante, cerință ușor realizabilă constructiv.

În principiu, dacă rata de generare a energiei în cavitate $\frac{N_n n_n}{\tau_c}$ este mai mare decît rata de pierderi $\frac{n_n}{\tau_c}$, atunci la regim staționar $N_n = N_n^e > 1$ și dispozitivul oscilează. Soluțiile de regim staționar ale ecuațiilor ratelor

$$N_n = n_n = 1 \tag{4.105}$$

$$N_n = N_n^e; \; n_n = 0 \tag{4.106}$$

permit și analiza stabilității regimurilor de funcționare corespunzătoare, prin metoda perturbațiilor.

Astfel, admițînd abateri exponențiale $\delta n(t)$ și $\delta N(t)$ pentru soluțiile n_n și N_n, de forma

$$n_n(t) = 1 + \delta n(t) \tag{4.107}$$

$$N_n(t) = 1 + \delta N(t) \tag{4.108}$$

unde $\delta \ll 1$ din (4.98) și (4.99) rezultă ecuațiile

$$\dot{N}(t) + \frac{N_n^e}{T_1} N(t) = \frac{1 - N_n^e}{T_1} n(t) \quad (4.109)$$

$$\dot{n}(t) = \frac{1}{\tau_c} N(t). \quad (4.110)$$

Pentru dependențe exponențiale de timp ale mărimilor $n(t)$ și $N(t)$ de forma $e^{\xi t}$ se obține o ecuație algebrică în ξ

$$\xi^2 + \frac{N_n^e}{T_1} \xi - \frac{1 - N_n^e}{T_1 \tau_c} = 0 \quad (4.111)$$

ale cărei soluții au partea reală negativă pentru $N_n^e > 1$, astfel că soluția (4.105) este stabilă.

Analog se arată că soluția (4.106) este stabilă pentru $N_n^e < 0$, însă această soluție cu $n_n = 0$ nu corespunde realității, energia în cavitate fiind nulă.

Prin urmare, condiția de prag pentru dispozitivul laser este determinată de inegalitatea

$$N_n^e \geqslant 1. \quad (4.112)$$

Această condiție se poate explicita funcție de parametrii sistemului astfel

$$N^e = \frac{N_2^e}{g_2} - \frac{N_1^e}{g_1} = N_0 N_n^e > \frac{3\hbar \varepsilon}{L|\mathbf{d}_{12}|^2 \Omega \tau_c F T_2} \quad (4.113)$$

unde g_1, g_2 reprezintă factorii de degenerare ai nivelelor implicate în tranziție, iar F factorul de umplere al rezonatorului de către mediul activ.

Condiția de prag de oscilație poate fi utilizată pentru calculul puterii de pompaj a dispozitivului laser. Prin pompaj trebuie să se asigure o diferență de populație peste valoarea N_T^e a acesteia la echilibru termic, astfel că puterea absorbită prin pompaj are expresia

$$P_{excitare} = \frac{\hbar\Omega}{2} \left(\frac{N^e - N_T^e}{2} \right). \quad (4.114)$$

Din ecuația (4.113) se poate obține expresia puterii de pompaj la pragul de oscilație

$$P_{pr} = \frac{\hbar\Omega}{2T_1} \left[\frac{3\hbar \varepsilon}{L|\mathbf{d}_{12}|^2 \Omega \tau_c T_2 F} - N_T^e \right]. \quad (4.115)$$

4.4.2. Puterea de ieșire în regim staționar

Cuplarea cu exteriorul a energiei cavității se face prin transmisia oglinzilor astfel că trebuie calculat timpul de viață al energiei electromagnetice din cavitate τ_m datorat transmisiei acestora. Dacă R_1 și R_2 sînt reflectivitățile oglinzilor se poate scrie egalitatea

$$R_1 R_2 = e^{-2nl/\tau_m c} \quad (4.116)$$

astfel încît se obține expresia lui τ_m

$$\tau_m = -\frac{2nl}{c \ln (R_1 R_2)}. \tag{4.117}$$

unde l este distanța dintre oglinzi.

Densitatea de volum a energiei electromagnetice din cavitate ρ_E scade în timp după legea

$$\rho_E = \rho_{E0}\, e^{-t/\tau_m} \tag{4.118}$$

unde

$$\rho_E = nh\Omega. \tag{4.119}$$

La prag, conform relației (4.105), $n_n = 1$ astfel încît

$$n = n_0 = \frac{\tau_c}{T_1}\frac{N_0}{2}(N_n^e - 1). \tag{4.120}$$

Întrucît puterea de ieșire pe unitatea de volum este dată de relația

$$P_0 = \frac{\rho_E}{\tau_m} \tag{4.121}$$

se obține pe baza relațiilor de mai sus expresia acesteia, funcție de parametrii celor doi oscilatori cuplați, sistem atomic-cavitate rezonantă

$$P_0 = \frac{h\Omega}{\tau_m}\frac{\tau_c}{T_1}\frac{N_0}{2}(N_n^e - 1). \tag{4.122}$$

4.4.3. Studiul regimului tranzitoriu

Comportarea tranzitorie a dispozitivelor laser este deosebit de importantă pentru studiul regimului de lucru în impulsuri, perioada de repetiție a impulsurilor putînd fi comparabilă cu constantele de timp ale oscilatorului laser.

Analiza cantitativă a regimului tranzitoriu se face cu ajutorul ecuațiilor ratelor (4.98) și (4.99), ținîndu-se seama de condițiile inițiale. Astfel, la momentul $t = 0$, $N_n = 1$ și $n_n \ll 1$ iar $N_n^e > 1$.

Calculînd raportul dn_n/dN_n pentru $N_n = 1$ se obține ecuația diferențială

$$\frac{dn_n}{dN_n} = \frac{T_1(N_n - 1)\, n_n}{\tau_c(1 - N_n^e)(n_n - 1)} \tag{4.123}$$

care se poate integra prin separarea variabilelor, considerîndu-se pentru $N_n = 1$, $n_n = n_n^i$.

Rezultă dependența dintre n_n și N_n sub forma

$$\frac{T_1}{2\tau_c(N_n^e - 1)}(N_n - 1)^2 = \ln\frac{n_n}{n_n^i} - (n_n - n_n^i). \tag{4.124}$$

Sensurile de variație ale densității de fotoni n_n funcție de diferența de populație N_n sînt arătate calitativ în fig. 4.8, a, iar dependența temporală a acestor mărimi este arătată în figura 4.8, b.

Pe aceste diagrame se disting patru regiuni diferite:

a) deoarece inițial $n_n < 1$, ecuația (4.98) se scrie sub forma:

$$\dot{N}_n - \frac{N_n - N_n^e}{T_1} = 0 \qquad (4.125)$$

assfel că N_n crește exponențial în timp.

Din ecuația (4.99) rezultă simultan și creșterea lui n_n, deoarece $\dot{n}_n > 0$;

b) cînd $n_n > 1$, întrucît $N_n^e > 1$, $N_n \simeq 1$, $\dot{N}_n$ este negativ astfel că N_n începe să descrească conform ecuației (4.98);

c) cînd N_n devine subunitar, din ecuația (4.99), rezultă că $\dot{n}_n$ devine negativ și n_n începe să scadă;

d) prin scădere, n_n devine subunitar; $\dot{N}_n$ fiind pozitiv, N_n crește, ajungînd supraunitar și ciclul se repetă.

Ecuația (4.124) permite calculul valorilor maxime pentru densitatea de fotoni $n_{n,\,max}$ și pentru inversia de populație $N_{n,max}$. Astfel pentru $N_n = 1$ se obține ecuația

$$n_{n,\,max} = \ln \frac{n_{n,\,max}}{n_n^i}. \qquad (4.126)$$

Fig. 4.8.

De asemenea, pentru $n_n = 1$ și $n_n^i \ll 1$ se obțin valorile

$$N_{n,\,\substack{max \\ (min)}} = 1 \pm \left[\frac{2\tau_c(N_n^e - 1)}{T_1}\right]^{1/2} [-1 - \ln n_n^i]^{1/2}. \qquad (4.127)$$

De remarcat că valorile n_n^i obținute după fiecare ciclu din soluțiile exacte ale ecuațiilor ratelor sînt crescătoare, astfel că traiectoria $n_n(N_n)$ nu este o curbă închisă ci o spirală.

4.4.4. Funcționarea în regim Q-switch

Din ecuațiile ratelor pentru laseri rezultă că valoarea maximă a diferenței de populație care se poate obține prin pompaj este limitată la valori care nu pot depăși mult pragul de oscilație. S-a constatat însă că diferența de populație poate depăși semnificativ acest prag, dacă este împiedicată oscilația, prin varierea controlată a pierderilor rezonatorului.

Regimul de funcționare care se obține în acest fel, numit de *Q-switch*, este în impulsuri fiind caracterizat de puteri de ieșire crescute cu mai multe ordine de mărime în raport cu cele de regim staționar.

Dacă printr-o metodă oarecare se cresc pierderile rezonatorului la un moment dat, pragul de oscilaţie nu mai este atins şi diferenţa de populaţie poate atinge valori însemnate. O reducere bruscă a pierderilor cavităţii, după ce este atinsă valoarea de echilibru N^e, într-un interval de timp mult mai scurt decît timpul de relaxare al stărilor iniţiale, determină iniţierea imediată a oscilaţiei laser, energia ridicată înmagazinată în mediul activ fiind cedată în cea mai mare parte cîmpului din cavitate.

Analiza regimului de Q-switch se poate face în planul $n_n N_n$. Astfel, din ecuaţiile ratelor, se poate calcula raportul dn_n/dN_n, neglijindu-se termenul $\frac{N_n - N_n^e}{T_1}$ în raport cu $\frac{1 - N_n^e}{T_1} n_n N_n$, datorită condiţiei $n_n \gg 1$. Rezultă ecuaţia diferenţială

$$\frac{dn_n}{dN_n} = -\frac{T_1}{\tau_c(N_n^e - 1)}\left(\frac{N_n - 1}{N_n}\right). \tag{4.128}$$

care se integrează prin metoda separării variabilelor obţinîndu-se dependenţa

$$n_n = \frac{T_1}{\tau_c(N_n^e - 1)}\left[\ln\frac{N_n}{N_n^e} + N_n^e - N_n\right], \tag{4.129}$$

fiind valabilă totodată condiţia la limită

$$N_n = N_n^e \quad \text{pentru} \quad n_n = 0.$$

Dependenţa $n_n(N_n)$ este prezentată grafic calitativ în fig. 4.9.

Pentru $N_n^e = 2$, de exemplu, amorsarea oscilaţiei prin creşterea bruscă a lui Q, determină o creştere însemnată a densităţii de fotoni din cavitate. După ce se atinge nivelul $N_n = 1$, densitatea de fotoni începe să scadă, rapid către zero. Energia cedată cîmpului cavităţii se poate calcula cu relaţia

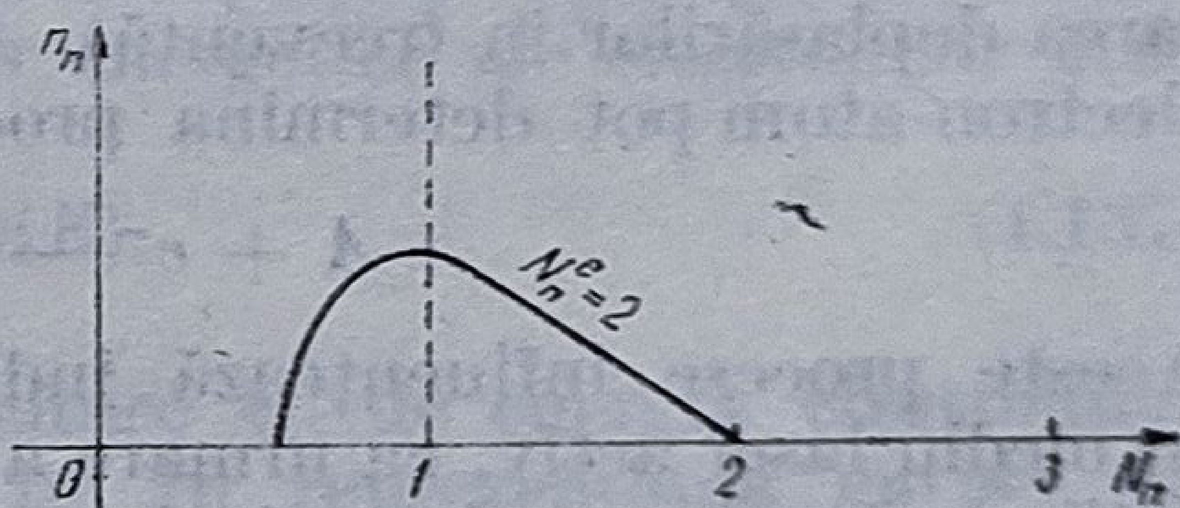


Fig. 4.9

$$E = \frac{h\Omega}{2}(N_{n,\,max} - N_{n,\,min})\, N_0 V. \tag{4.130}$$

Ţinîndu-se seama de puterea maximă a impulsului emis care rezultă din ecuaţia (4.129) şi de energia cedată cîmpului cavităţii care rezultă din relaţia (4.130) se poate estima durata impulsurilor emise.

Metodele cele mai mult utilizate pentru controlul factorului de calitate al cavităţii în vederea obţinerii regimului de funcţionare Q-switch sînt: folosirea elementelor modulatoare în cavitate, introducerea în cavitate a unor absorbanţi saturabili etc.

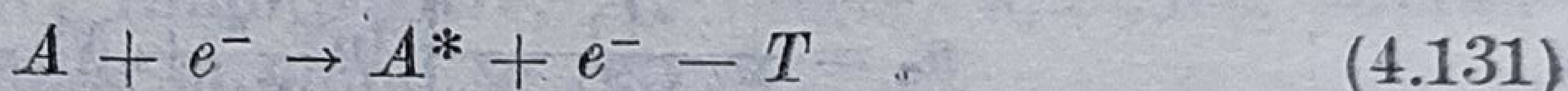
Densităţile de energie caracteristice regimului Q-switch sînt de $10^5 \div 10^6$ ori mai mari în raport cu cele de regim staţionar. De asemenea, puterile de vîrf ating valori uriaşe, de ordinul a 10 MW, pentru laseri avînd puteri de regim staţionar relaxat de ordinul zecilor de waţi.

4.5. Mecanisme de excitare a dispozitivelor laser

Excitarea mediului laser activ în vederea creării inversiei de populaţie peste nivelul de prag se poate obţine prin diferite mecanisme, cele mai utilizate fiind : ciocnirile electronice, transferul rezonant de excitaţie, pompajul optic, procesele gaz dinamice, reacţiile chimice, efectul Penning, injecţia, pompajul cu fascicule de electroni, cîmpuri electrice şi magnetice etc. Unele particularităţi definitorii ale acestor mecanisme de excitare se prezintă în continuare.

4.5.1. Excitarea prin ciocniri electronice

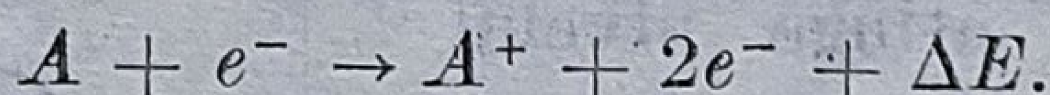
Este metoda cea mai utilizată pentru excitarea laserilor cu gaz. În urma unei descărcări electrice într-un mediu gazos, în incintă apar ioni şi electroni care prin accelerare în cîmp electric pot excita prin ciocniri atomii şi moleculele neutre. Cîmpul electric accelerator poate fi continuu, de radiofrecvenţă, pulsatoriu etc. Ţinîndu-se seama că deplasarea electronilor este mult mai mare decît a ionilor, procesele caracteristice de ciocnire vor fi de tipul



$$A + e^- \rightarrow A^* + e^- - T \qquad (4.131)$$

numite *ciocniri de speţa întîi*. În aceste procese electronul accelerat în cîmp cedează energia sa cinetică T atomului pe care-l excită.

De observat că ciocnirile de speţa întîi sînt ciocniri neelastice, caracterizate de modificarea energiei şi eventual a direcţiei electronului incident. Rolul ciocnirilor elastice, care au de asemenea loc în descărcare, va fi reliefat ulterior (sînt importante în lărgirea liniei emise şi în explicarea deplasărilor în frecvenţă). Alături de procesele de exitare, ciocnirile electron-atom pot determina procese de ionizare prin interacţii de tipul



$$A + e^- \rightarrow A^+ + 2e^- + \Delta E.$$

Aceste procese influenţează indirect producerea inversiei de populaţie în mediu laser activ, ca urmare a rolului pe care îl au în creşterea densităţii electronice a plasmei, după cum se va arăta în continuare.

O mărime importantă pentru caracterizarea cantitativă a proceselor de ciocnire o constituie secţiunea eficace de excitare σ^e definită prin relaţia

$$d\Phi_e = - \sigma^e N_0 \Phi_e dz \qquad (4.132)$$

unde N_0 reprezintă densitatea de atomi în stare fundamentală, Φ_e fluxul de electroni, iar $d\Phi_e$ variaţia fluxului de electroni pe distanţa dz.

Dacă se notează cu $|v_1>$ şi $|v_2>$ nivelele laser implicate în tranziţie, se poate defini secţiunea eficace de excitare σ_{12}^e care ia în considerare numai procesele de excitare utile pentru crearea inversiei de populaţie între nivelele considerate.

Astfel, dacă se notează cu N_2 populaţia nivelului laser superior, variaţia în timp a populaţiei acestui nivel este dată de relaţia

$$\left(\frac{dN_2}{dt}\right)_e = -\left(\frac{d\Phi_e}{dz}\right)_{12} = N_0 N_e v \sigma_{12}^e = N_0 R_{12}. \qquad (4.133)$$

În relaţia de mai sus s-a considerat că

$$\Phi_e = N_e v \tag{4.134}$$

unde N_e reprezintă densitatea electronilor din descărcare, iar v viteza acestora. De asemenea, s-a introdus notaţia

$$R_{12} = \sigma_{12}^e \Phi_e \tag{4.135}$$

unde R_{12} reprezintă *rata de pompaj* electron-atom.

Calculul efectiv al secţiuni eficace de excitare se face în aproximaţia Born presupunîndu-se o interacţie slabă între electronul incident şi atom, în urma ciocnirii producîndu-se cu o probabilitate semnificativă numai o singură tranziţie. Se obţine

$$\sigma_{12}^e \sim \int_{K_{min}}^{K_{max}} \left| \int \psi_1 \exp(ikz) \psi_2^* d\tau \right|^2 K dK, \tag{4.136}$$

ψ_1 şi ψ_2 fiind funcţiile de undă caracteristice stărilor $|v_1>$ şi $|v_2>$, iar K modulul vectorului ce caracterizează transferul de impuls al electronului incident.

În general, se cunosc două tipuri de ciocniri electronice:

a) care determină tranziţii permise optic;

b) care determină tranziţii interzise optic.

a) În cazul tranziţiilor permise optic, din ecuaţia (4.136), rezultă că secţiunea de excitare σ_{12}^e este proporţională cu pătratul elementului de matrice al momentului de dipol electric pentru tranziţia laser multiplicat, cu funcţia de distribuţie a stărilor energetice ale electronilor $g(E)$

$$\sigma_{12}^e \sim |\mathbf{d}_{12}|^2 g(E). \tag{4.137}$$

Dependenţa calitativă a secţiunii de excitare σ_{12}^e de energia electronilor excitatori este prezentată în figura 4.10. În reprezentarea curbei s-a notat cu E_p energia pragului de excitare $E_p = E_{12}$, s-a considerat pe ordonată secţiunea de excitare normată la valoarea maximă, iar pe abscisă s-a luat energia electronilor normată la valoarea de prag.

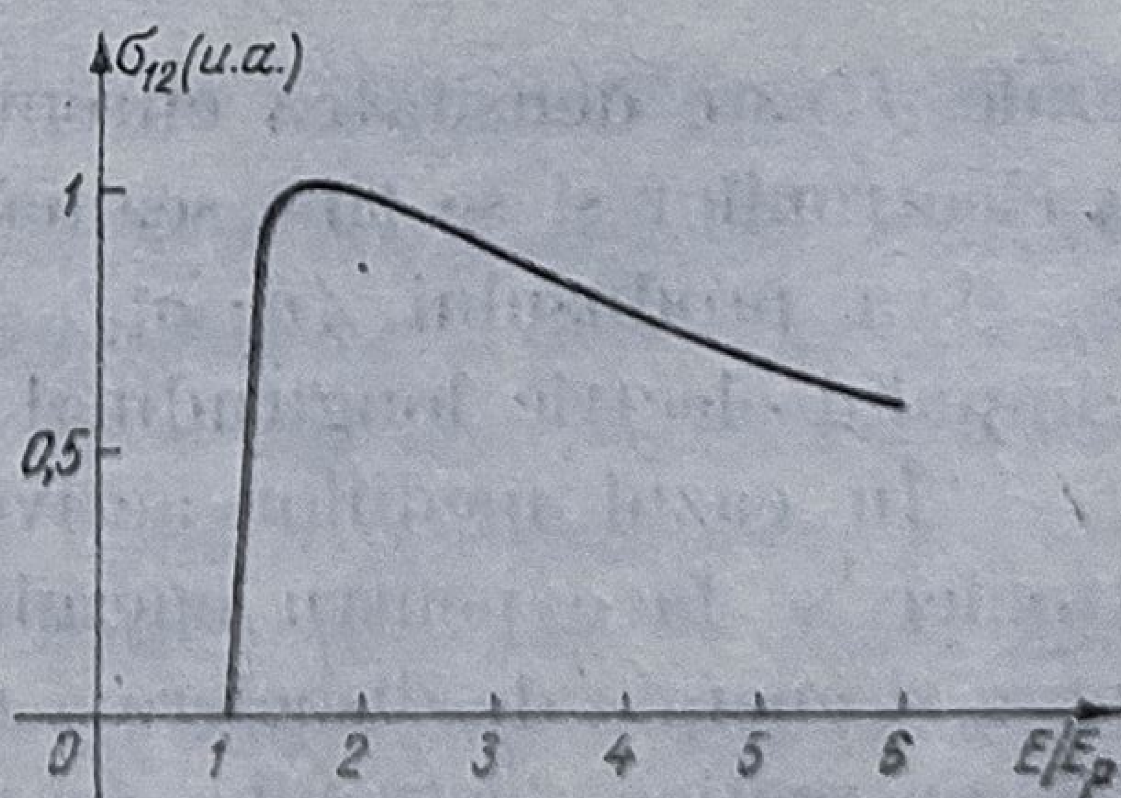


Fig. 4.10

Se constată că $\sigma_{12}^e = 0$ pentru $E < E_p$, o creştere aproximativ liniară a lui σ_{12}^e cu energia electronilor pînă la $\sigma_{12}^e(\max)$ după care σ_{12}^e scade lent, putînd fi aproximată prin funcţia $\ln E/E$.

Întrucît numărul electronilor avînd $E > E(\sigma_{max})$ este relativ mic, rezultă că procesele de ciocnire neelastică se produc cu precădere pentru $E_p < E < E(\sigma_{max})$.

Valoarea tipică a lui σ_{max}^e este de aproximativ 10^{-16}cm^2, iar lărgimea curbei de excitare de aproximativ 10 E_p.

b) În cazul tranzițiilor interzise optic, care au loc pe nivelul N_2 metastabil, procesele corespunzătoare pot determina sau nu modificarea multiplicității spinului. În cazul cînd nu se produce modificarea multiplicității spinului calculul secțiunii de excitare se face de asemenea în aproximația Born obținîndu-se pentru secțiunea de excitare o curbă cu o rată de scădere mai rapidă decît în cazul tranzițiilor permise optic (cu E^{-1}), valoarea maximă a secțiunii de excitare fiind mult mai scăzută, de aproximativ 10^{-19} cm^2.

În cazul cînd se produce modificarea multiplicității spinului, calculul secțiunii de excitare nu se mai poate face în aproximația Born, nemaifiind vorba de o simplă „cuplare'' a electronului incident la mișcarea orbitală a atomului, ci de o interacție cu schimb de electroni, electronul incident și emergent avînd spin opus.

Conform aproximației Bethe, secțiunea de excitare crește brusc în vecinătatea pragului, și apoi scade puternic, determinînd o lărgime redusă a curbei de excitare, valorile maxime ale lui σ^e fiind de aproximativ 10^{-16}cm^2, deci apreciabile.

Un studiu mai exact al proceselor de excitare trebuie să țină seama de distribuția energetică a electronilor, în calculul ratei de pompaj (4.135). Mediind produsul $v \cdot \sigma_{12}^e(E)$ care intervine în relația (4.133) cu ajutorul distribuției g(E) se obține pentru ata de pompaj expresia

$$R_{12} = < v \ \sigma_{12}^e > N_e. \tag{4.138}$$

Pentru o distribuție g(E) maxwelliană a electronilor, se constată că rata de pompaj este puternic dependentă de temperatura electronică T_e a plasmei descărcării.

O importanță deosebită o prezintă exprimarea ratei de pompaj R_{12} funcție de parametrii descărcării. Pentru aceasta se observă că în formula (4.138), densitatea electronică se poate obține din formula

$$N_e = \frac{J}{v_D e} \tag{4.139}$$

unde J este densitatea curentului descărcării, iar v_D este viteza de drift a electronilor și se ține seama de posibilitatea exprimării vitezei de drift v_D și a produsului $\langle v \cdot \sigma_{12}^e \rangle$ cu ajutorul raportului dintre intensitatea cîmpului electric longitudinal și densitatea totală de atomi din descăreare.

În cazul mediilor active moleculare, excitarea prin ciocniri electronice se face pentru energii ale electronilor cuprinse între energia de prag și energia de disociere a moleculelor. Existența cuplajului între nivelele energetice electronice, de vibrație și de rotație ale moleculelor precum și posibilitățile de disociere și ionizare a moleculelor, complică foarte mult calculul teoretic al secțiunii de excitare prin ciocniri electron-moleculă, deoarece energia electronilor se distribuie competitiv între diferite procese de excitare, cele mai probabile fiind conform datelor experimentale cele de excitare vibrațională.

Exemple de laseri pompați prin ciocniri electronice:

— excitarea nivelelor 2^3S și 2^1S ale heliului în laserul cu He—Ne;

— laserul $CO_2 : N_2 : He$ (molecular); o parte din energia electronilor este folosită pentru excitarea prin ciocniri a nivelului 00^01 al moleculei de CO_2;

— laserul cu neon pur — excitat prin ciocniri electronice directe;

— laserii cu heliu, argon, kripton, xenon.

4.5.2. Excitarea prin transfer rezonant de excitație

Transferul rezonant de excitație apare ca urmare a proceselor de ciocnire de tipul



$$A^* + B \rightleftarrows A + B^* + \Delta E \qquad (\Delta E < kT) \tag{4.140}$$

numite *ciocniri de speța a doua.*

În relația de mai sus A și B reprezintă atomii a două specii de gaz aflate în amestec, atomii A^* (B^*) fiind în stare excitată, iar atomii A (B) în stare fundamentală.

S-a constatat că pentru anumite mixturi atomice există o probabilitate ridicată pentru producerea proceselor descrise de ecuația (4.140), fiind deosebit de utile ca mecanisme de excitare a stărilor B^* pentru care secțiunea de excitare directă este mică, prin intermediul stărilor A^* metastabile, dar care au secțiune ridicată de excitare prin procese de alte tipuri, de exemplu, prin ciocniri electronice.

Secțiunea eficace de ciocnire pentru transfer rezonant de energie σ_{A^*B}, poate fi definită cu ajutorul relației

$$\left(\frac{dN}{dt}\right)_{A^*B} = N_{A^*} \cdot N_B \cdot v_{AB} \cdot \sigma_{A^*B} \tag{4.141}$$

unde $\left(\frac{dN}{dt}\right)_{A^*B}$ reprezintă numărul de tranziții de tipul (4.140) care au loc în unitatea de timp pe unitatea de volum, N_{A^*} și N_B populațiile stărilor atomice implicate în tranziție, iar v_{AB} viteza relativă a celor doi atomi.

Caracterul rezonant al tranziției duce la o variație puternică a lui σ_{A^*B} cu diferența de energie ΔE dintre cele două nivele între care are loc tranziția, fiind maximă pentru $\Delta E = 0$. Valorile pe care le poate lua σ_{A^*B} sînt cuprinse între $10^{-13} - 10^{-16}$ cm^2, fiind mai ridicate pentru tranzițiile permise optic „în ambii atomi", fără a fi interzise nici tranzițiile care nu satisfac regulile de selecție optice (putînd avea loc procese de transfer rezonant și între stări de aceeași paritate). În privința spinului, se respectă în general regula de conservare Wigner, datorită cuplării slabe a mișcărilor orbitale și de spin.

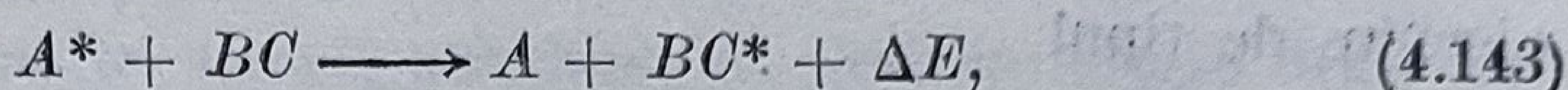
Se mai remarcă, de asemenea, o creştere rapidă a secţiunii de excitare σ_{A^*B} cu viteza relativă v_{AB} a celor doi atomi, pînă la valori ale acesteia

$$v \leqslant \frac{d\Delta E}{h} \tag{4.142}$$

unde d este distanţa de interacţie dintre atomi, după care se observă o scădere a lui σ_{A^*B} cu viteza.

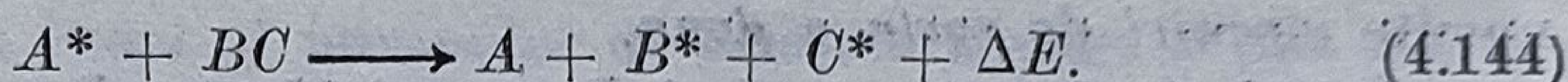
Alte scheme de producere a transferului rezonant de energie se referă la procesele de ciocnire atom-moleculă sau moleculă-moleculă.

Astfel, ciocnirile atom-moleculă pot determina trecerea moleculei într-o stare vibraţională excitată



$$A^* + BC \longrightarrow A + BC^* + \Delta E, \tag{4.143}$$

sau disocierea moleculei



$$A^* + BC \longrightarrow A + B^* + C^* + \Delta E. \tag{4.144}$$

Atomii B şi C pot fi sau nu identici, şi pot rezulta din interacţie ambii sau numai unul în stare excitată.

În ceea ce priveşte procesele de transfer rezonant moleculă-moleculă, acestea pot fi tratate în mod asemănător cu observaţia că în urma ciocnirii molecula care se dezexcită poate rămîne într-o altă stare excitată.

Exemple de laseri pompaţi prin transfer rezonant de energie:

a) ciocniri atom-atom

laseri atomici: laserul cu He-Ne (energia stărilor 2^3S şi 2^1S ale heliului, excitate prin ciocnirile electronice, este transferată rezonant nivelelor $2s (\sigma = 3{,}6 \cdot 10^{-17}\ \mathrm{cm}^2)$ şi $3s\ (\sigma = 4 \cdot 10^{-16}\ \mathrm{cm}^2)$ ale neonului).

b) ciocniri atom-moleculă

laseri moleculari

α) excitarea unei stări vibraţionale

Atomul excitat electronic	Molecule excitate pe stări vibraţionale
$Hg^*(6^3P_{10})$	CO, NO, HF
$Na^*\ (3^2P_{3/2,\ 1/2})$	CO
$Br_2 \rightarrow$ Fotodisociere $Br^*(4^2P_{1/2})$	CO_2, N_2O, HCN, C_2H_2, H_2O

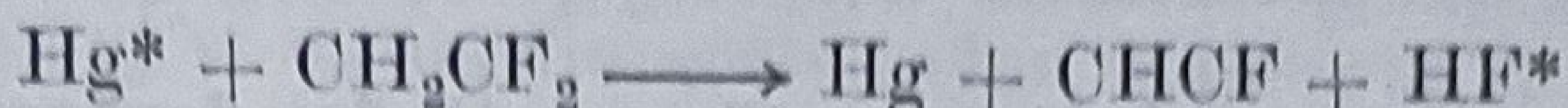
Schemă de proces:



$$Na^*(3P_{3/2,\ 1/2}) + CO \longrightarrow Na(3^2S_{1/2}) + CO^*$$

β) excitarea prin disociere (transfer disociativ de excitare) — gaze poliatomice (O_2, CO_2, CO, NO, NO_2, SF_6 Br_2 etc)

Schemă de proces



$$Hg^* + CH_2CF_2 \longrightarrow Hg + CHCF + HF^*$$

(rezultă molecule de HF^* excitate pe nivele vibraţionale)

c) ciocniri moleculă-moleculă

— *pomparea moleculelor de* CO_2 *cu ajutorul moleculelor de* N_2

$$(\Delta E = -18^{-1}\ \mathrm{cm})$$

(moleculele de N_2^* excitate pe un nivel vibraţional al stării electronice fundamentale nu se pot dezexcita prin tranziţii de dipol electric, avînd timp de viaţă lung).

4.5.3. Excitarea prin pompaj optic

Metoda excitării prin pompaj optic, propusă de către Schawlow şi Townes, constă în crearea unor diferenţe de populaţie diferite de cele de la echilibru termic, prin excitare optică rezonantă sau cvasirezonantă a mediului studiat, cu ajutorul unor surse de radiaţii de bandă largă sau monocromatice. Atunci cînd procesele de excitare optică rezonantă depăşesc pe cele de dezexcitare, se poate crea în mediul studiat inversia de populaţie, caracteristică dispozitivelor cuantice de tip laser.

Numeroase tipuri de laseri utilizează pompajul optic pentru realizarea inversiei de populaţie.

Astfel, primul laser realizat în lume, laserul cu rubin, folosea pentru pompajul optic un flash cu Xe. Alte exemple le constituie laserul cu sticlă dopată cu Nd pompat de asemenea cu o sursă flash cu Xe, laserul cu iod pompat cu o sursă flash tot cu Xe, laserul cu cesiu pompat cu o sursă conţinînd He, laserii rotaţionali, unii laseri moleculari etc.

Scheme pentru realizarea inversiei de populaţie prin pompaj optic:

— *schemele cu trei nivele*, normală şi inversată (fig. 4.11).

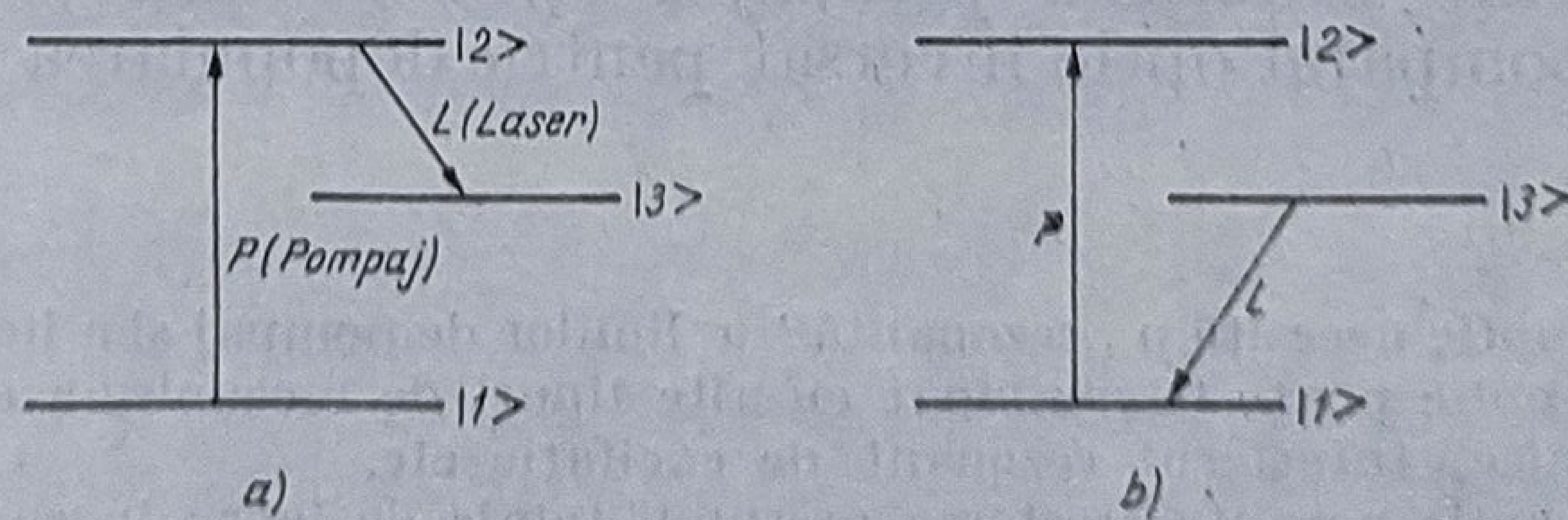


Fig. 4.11

Schema cu trei nivele normală (fig. 4.11) cuprinde excitarea nivelului laser superior $|2\rangle$ prim pompaj optic astfel că se creează inversia de populaţie între nivelele laser $|2\rangle$ şi $|3\rangle$. Dacă $E_2 > E_3 \gg E_1 + kT$,

nivelele $|2\rangle$ şi $|3\rangle$ sînt practic nepopulate înainte de pompaj, astfel că prin pompaj se poate realiza relativ uşor inversia de populaţie între aceste nivele.

Schema cu trei nivele inversată constă în depopularea nivelului laser inferior $|1\rangle$ prin pompaj optic pe nivelul $|2\rangle$, astfel că se realizează inversia de populaţie între nivelele laser $|3\rangle$ şi $|1\rangle$.

— *schemele de pompaj optic cu patru nivele* (fig. 4.12).

Schema cu patru nivele din fig. 4.12, a, cuprinde pompajul optic între nivelele $|1\rangle$ şi $|2\rangle$, dezexcitarea neradiativă sau radiativă între nivelele $|2\rangle$ şi $|3\rangle$ şi tranziţia laser între nivelele $|3\rangle$ şi $|4\rangle$. Atunci cînd au loc tranziţii laser şi între nivelele $|2\rangle$ şi $|3\rangle$, urmate de tranziţia laser $|3\rangle$ — $|4\rangle$, se produce fenomenul cunoscut sub numele de *cascade laser.*

Avantajul utilizării schemelor cu patru nivele e determinat în general de populaţia redusă a nivelului laser inferior, situat mult deasupra nivelului fundamental, astfel că se poate crea uşor inversia de populaţie.

Schema cu patru nivele din fig. 4.12, b, utilizează transferul rezonant de energie între nivelele $|2\rangle$ şi $|3\rangle$, nivelul $|2\rangle$ fiind pompat optic.

Schema cu patru nivele din fig. 4.12, c, utilizează pompajul optic în două trepte (push-push) prin procese bifotonice.

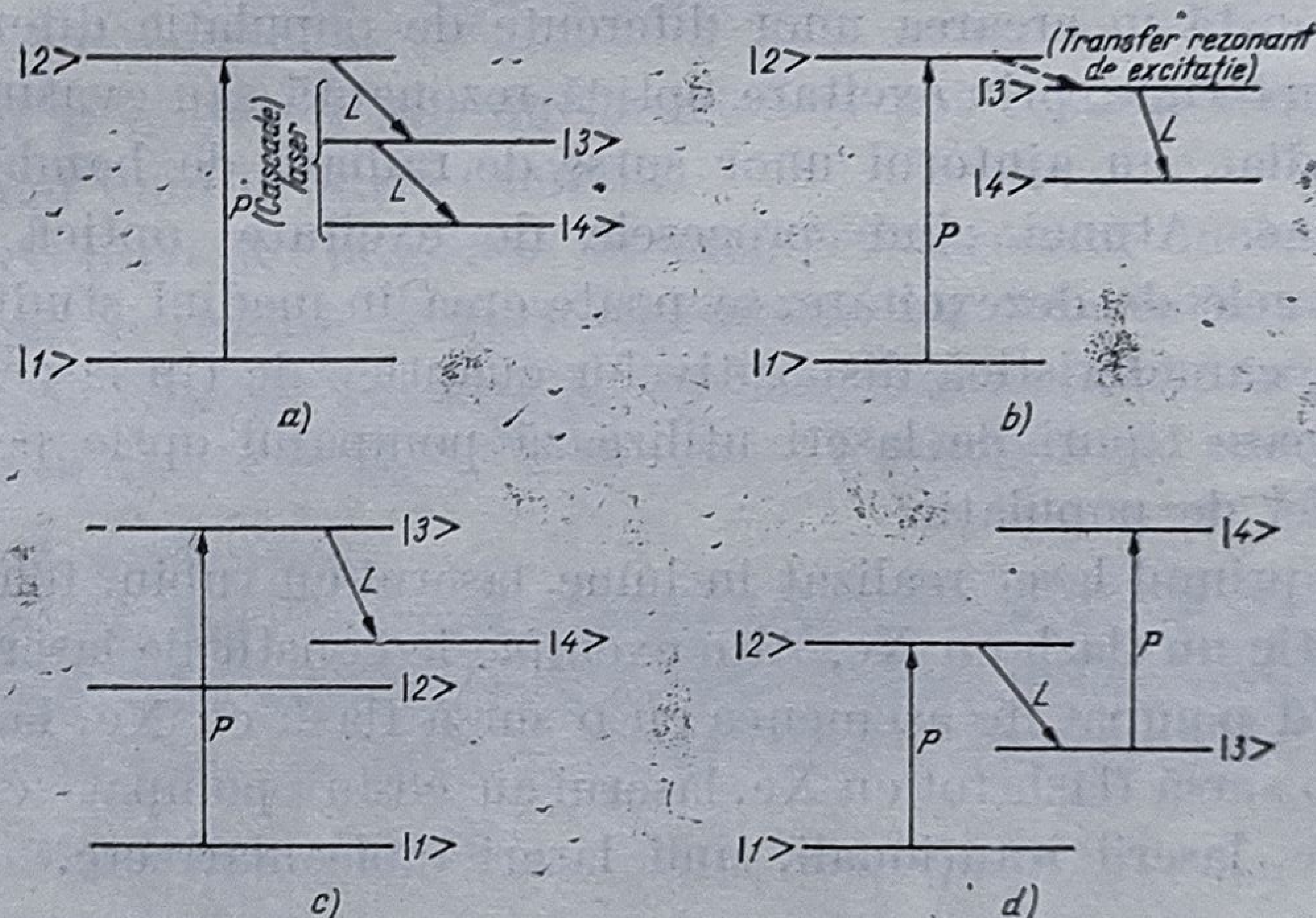


Fig. 4.12

În sfîrşit, schema cu patru nivele din fig. 4.12, d, este o schemă de tip push-pull, care utilizează pompajul optic normal pe nivelul laser superior $|2\rangle$ şi pompajul optic inversat pentru depopularea nivelului laser inferior $|3\rangle$.

Observaţii.

— Pompajul optic necesită o „rezonanţă" a liniilor de pompaj şi a liniilor de absorbţie.

— Pompajul optic poate fi combinat cu alte tipuri de mecanisme de excitare cum ar fi ciocnirile electronice, transferul rezonant de excitaţie etc.

— Pompajul optic permite creşterea presiunii totale de lucru în cazul mediilor active gazoase, ca urmare a scăderii pericolului de disociere a moleculelor în timpul descărcărilor electrice.

— Pompajul optic se poate face selectiv, făcînd posibilă excitarea preferenţială a tranziţiilor.

— Pompajul optic a permis extinderea gamei de linii laser în infraroşul îndepărtat ca urmare a acordabilităţii şi îmbogăţirii surselor de pompaj, printre care un rol important îl joacă chiar pompajul laser.

Estimarea ratei de pompaj. Fie o sursă de pompaj monocromatică, avînd frecvența ν_p și un mediu activ avînd populația nivelului de pe care se face pompajul N_0, nivelul superior fiind nepopulat.

Puterea de pompaj absorbită de unitatea de volum a mediului activ, va fi dată de relația

$$\frac{dP}{dV} = WN_0 h\nu_p \tag{4.145}$$

unde W reprezintă rata de absorbție. Dacă se notează cu σ secțiunea de absorbție a atomilor mediului activ și cu I_ν intensitatea cîmpului de radiație se poate scrie

$$\frac{dP}{dV} = N_0 \sigma I_\nu = N_0 \frac{\sigma c}{n} \rho_E \tag{4.146}$$

unde ρ_E este densitatea energiei de pompaj iar n indicele de refracție al mediului activ.

Prin urmare, rata de absorbție W se obține din relațiile (4.145) și (4.146)

$$W = \frac{\sigma I_\nu}{h\nu_p} = \frac{\sigma c \rho_E}{nh\,\nu_p} \tag{4.147}$$

Alți parametri utilizați pentru caracterizarea dispozitivelor care utilizează pompajul optic sînt :

— eficiența de conversie teoretică

$$\eta = \frac{1}{2} \frac{\lambda_p}{\lambda} \delta \qquad \delta = 1 - \exp(-\alpha NL); \tag{4.148}$$

— eficiența de conversie energetică

$$\eta_e = E/E_p \delta; \tag{4.149}$$

— eficiența globală $= \dfrac{\text{energia emisă de laser}}{\text{energia totală consumată}}$.

4.5.4. Excitarea prin procese gaz-dinamice

Excitarea prin procese gaz dinamice este utilizată pentru crearea inversiei de populație pe cale termică, astfel că mai poartă numele de *pompaj termic*.

Principiul acestei metode de excitare a fost propus de către Basov și Oraevski în anul 1963.

Amestecul de gaz care constituie mediul laser curge printr-o conductă ce prezintă pe traseul său o duză prin care se produce o expansiune puternică a gazului (fig. 4.13). În interiorul conductei gazul este încălzit astfel că în regiunea duzei temperatura și presiunea ating valori importante ($T_a = 1000 \div 1500$ K, $p_a = 10 \div 20$ atm).

La ieșirea din duză parametrii gazului care suferă destinderea se modifică substanțial, obținîndu-se valori scăzute ale presiunii și temperaturii, viteza gazului crescînd foarte mult ($T_e = 300 \div 400$ K, $p_e = 0{,}1$ atm, $v_r = 2 \div 6$ M).

În regiunea I, 0,1 ÷ 0,2 din energie este constituită din energia de vibrație a moleculelor, iar restul, din energia de translație și de rotație a acestora.

După destindere, în regiunea II, energiile de translație și rotație se transformă în energie cinetică, pe cînd energia de vibrație rămîne practic neschimbată, deoarece timpii de relaxare vibrațională sînt mult mai mari decît cei de relaxare rotațională.

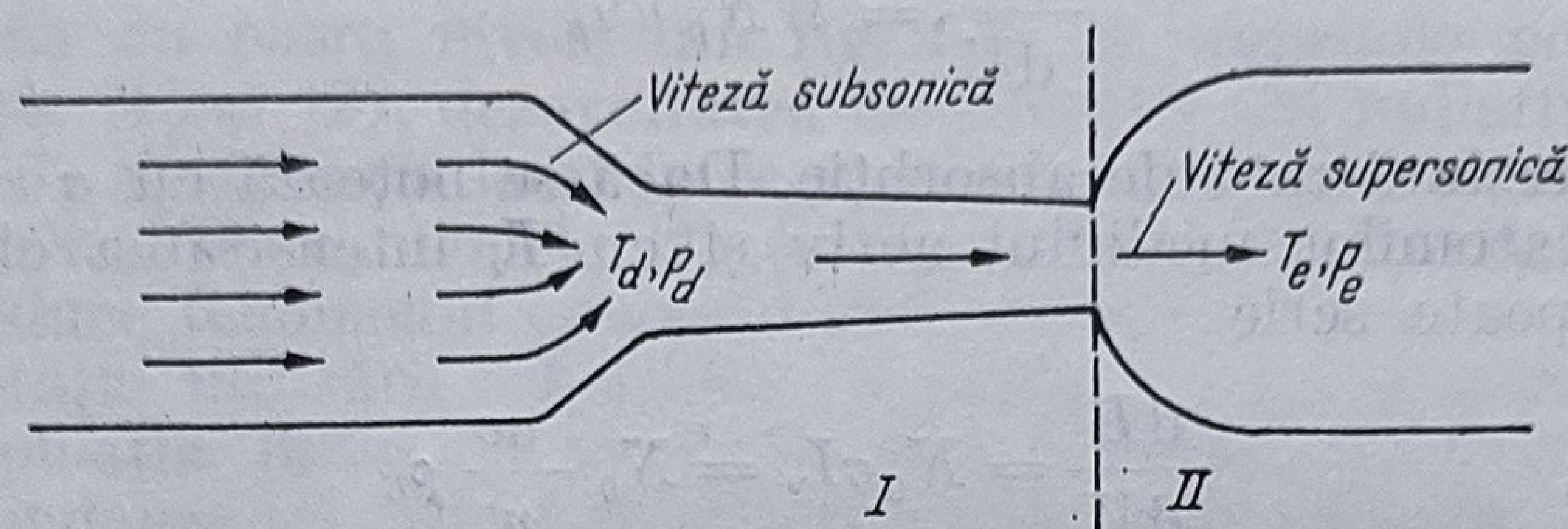


Fig. 4.13

Pentru laserul cu CO_2, de exemplu, tranzițiile laser au loc între nivelul combinat $CO_2(00°1)$ și $N_2(v = 1)$ care constituie nivelul laser superior (energia fiind acumulată în starea metastabilă a N_2 și nivelul laser inferior, constituit de nivelele $CO_2(10°0$ și $02°0)$

Populația nivelului I este cea corespunzătoare temperaturii ridicate din regiunea I, datorită metastabililor de N_2. Se păstrează la valoare ridicată cam pînă la 1m de duză.

Populația nivelului II este cea corespunzătoare temperaturii scăzute din regiunea II (se anulează la cîtiva centimetri de duză).

Apare astfel inversia de populație între nivelele I și II care se menține cam pînă la 1 m de duză.

Ca urmare energia termică este convertită direct în energie laser (pompaj termic).

Temeraturile ridicate din regiunea duzei se pot obține prin încălzirea cu arc sau arderea diferitelor gaze.

4.5.5. Excitarea prin reacții chimice (pompajul chimic)

Pompajul chimic constă în utilizarea energiei degajate în reacțiile chimice în vederea creării inversiei de populație, pentru unul sau mai mulți dintre produșii de reacție, astfel că energia chimică este transformată în energie electromagnetică.

În anul 1961, J. C. Polanyi a propus utilizarea reacțiilor chimice exoterme pentru crearea inversiei de populație, însă primii laseri chimici au fost realizați în 1964 (laserul cu iod provenit din fotoliza CH_3I și laserul cu HCl).

Radiația electromagnetică care se produce în laserii chimici poate proveni din tranziții între stări electronice, vibraționale și rotaționale, astfel că acoperă un spectru larg, cuprins între cîțiva microni și cîteva sute de microni.

a) *Tipuri de reacții chimice pentru pompaj.* Se cunosc mai multe tipuri de reacții chimice care pot fi utilizate pentru pompajul chimic al dispozitivelor laser, cele mai importante fiind următoarele [32]: reacții

de schimb cu trei atomi; reacţii de extragere; reacţii de eliminare; reacţii de fotodisociere.

Reacţiile chimice utilizate pentru pompaj chimic trebuie să fie caracterizate de rate de reacţie ridicate pentru a fi compensate procesele de dezexcitare şi alte procese de pierderi ale energiei. Energia disponibilă într-o reacţie chimică E_D este dată de suma dintre energia de reacţie ΔH şi energia de activare E_A

$$E_D = \Delta H + E_A. \tag{4.150}$$

Întrucît E_D trebuie să depăşească energia de excitare a stării laser superioare, reacţiile de pompaj chimic trebuie să fie direct sau indirect exoterme.

α) *Reacţiile de schimb cu trei atomi.* Sînt reacţii care au loc după schema



$$A + BC \longrightarrow AB^* + C \tag{4.151}$$

în condiţiile în care legătura chimică AB este mai puternică decît legătura chimică BC şi energia de activare a reacţiei este mică. Molecula AB rezultă într-o stare vibraţională excitată, prin utilizarea energiei de reacţie.

Prin urmare, acest tip de reacţii necesită prezenţa atomilor liberi în mediul laser.

Exemple de laseri chimici pompaţi prin reacţii de schimb:

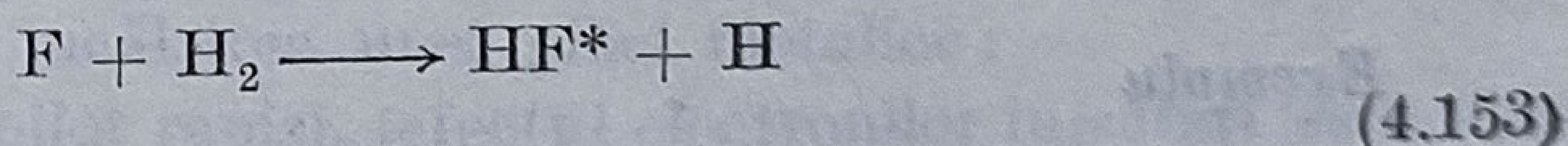
— laserul cu HCl



$$H + Cl_2 \longrightarrow HCl^* + Cl. \tag{4.152}$$

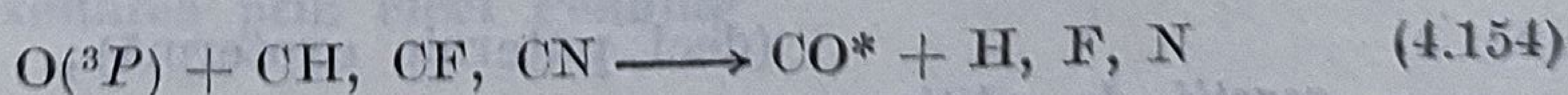
Energia de activare a reacţiei este $E_A = 7{,}5$ kJ/mol iar energia rezultată din reacţie este $-\Delta H = 189$ kJ/mol, astfel că se eliberează o mare cantitate de energie pentru excitarea moleculelor de HCl pe nivele vibraţionale (Se arată că în cazul de mai sus 39% din energia rezultată este utilizată pentru excitarea moleculelor de HCl, ajungîndu-se în stări excitate avînd chiar $v = 6$);

— laserul cu HF



$$F + H_2 \longrightarrow HF^* + H$$
$$(-\Delta H = 132 \text{ kJ/mol}, \quad E_A = 7{,}1 \text{ kJ/mol}); \tag{4.153}$$

— laserul cu oxid de carbon (CO)



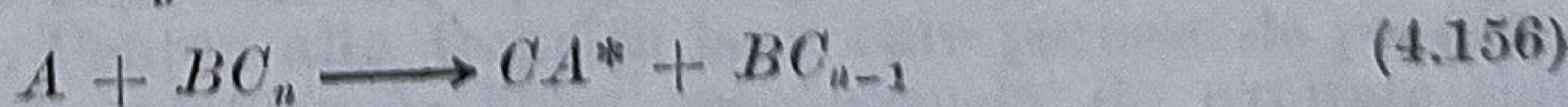
$$O(^3P) + CH,\ CF,\ CN \longrightarrow CO^* + H,\ F,\ N \tag{4.154}$$

sau



$$O + CS \longrightarrow CO^* + S \tag{4.155}$$

β) *Reacţiile de extragere.* Sînt reacţii care au loc după schema:



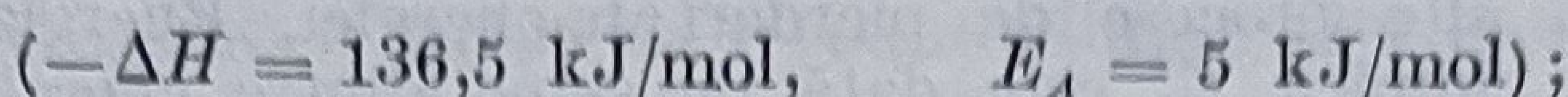
$$A + BC_n \longrightarrow CA^* + BC_{n-1} \tag{4.156}$$

în condiţiile în care energia de legătură CA^* este mai mare decît energia de legătură a lui C în BC_n, iar energia de activare a reacţiei este coborîtă. Ca şi reacţiile de schimb, reacţiile de extragere necesită prezenţa atomilor liberi în mediul laser.

Exemple de laseri chimici pompați prin reacții de extragere :

— laserul cu HF

$$F + CH_4 \longrightarrow HF^* + CH_3 \qquad (4.157)$$



$$(-\Delta H = 136{,}5 \text{ kJ/mol}, \qquad E_A = 5 \text{ kJ/mol});$$

— laserul cu oxid de carbon (CO)

$$O + CS_2 \longrightarrow CO^* + S_2 \qquad (4.158)$$

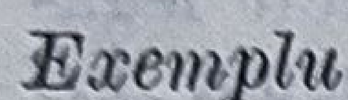
Alte tipuri de substanțe utilizate :

— hidrurile anorganice : SiH_4, GeH_4, hidrocarburile ciclice etc.

γ) *Reacțiile de eliminare (fragmentare)*

— *cu combinarea radicalilor*

$$AB_n + CD_m \longrightarrow AB_nCD_m^* \longrightarrow BD^* + AB_{n-1} + CD_{m-1}; \qquad (4.159)$$



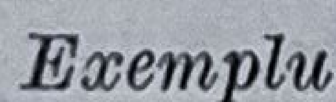
Exemplu

$$\underbrace{CH_3 + CF_3 \longrightarrow}_{\substack{-\Delta H = 418{,}5 \text{ kJ/mol} \\ E_A \simeq 0}}^{\text{(exotermă)}} CH_3CF_3^* \underbrace{\longrightarrow HF^*}_{\substack{\Delta H = 130 \text{ kJ/mol} \\ E_A \simeq 297{,}2 \text{ kJ/mol.}}}^{\text{(endotermă)}} + H_2C + CF_2 \qquad (4.160)$$

Deci energia rezultată din prima reacție este utilizată în cea de-a doua reacție, care se face cu eliminarea HF* excitat.

— *reacții de inserție a atomilor*

$$A + BCD_n \underset{\substack{\uparrow \\ \text{reacția de inserție} \\ \text{a atomului } A}}{\longrightarrow} BACD_n^* \longrightarrow CD^* + BD_{n-1} = A \ \text{(legătură dublă)} \qquad (4.161)$$



Exemplu

$$O(^1D) \longrightarrow CHF_3 \longrightarrow HOCF_3^* \longrightarrow HF^* + F_2C = O \qquad (4.162)$$

$$\Delta H = -\ 649 \text{ kJ/mol}$$

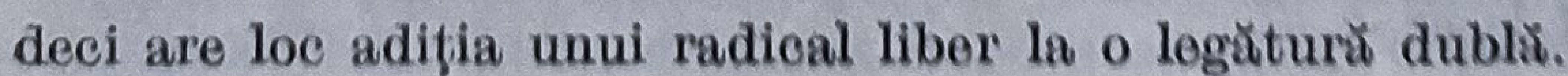


(deci puternic exotermă);

— *reacții de adiție*

Exemplu

$$CH_2CH_2 + NF \longrightarrow \underset{\substack{\diagdown\ \diagup \\ N \\ | \\ F}}{H_2C - CH_2^*} \longrightarrow HF^* + CH_3C \equiv N \qquad (4.163)$$



$$\Delta H = -\ 485 \text{ kJ/mol}$$

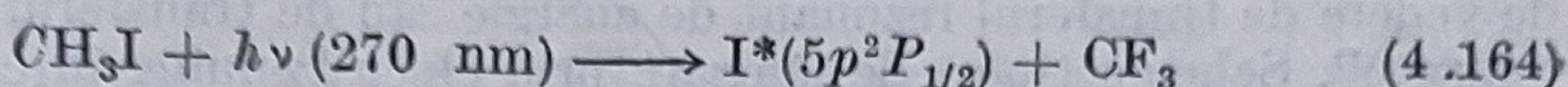
deci are loc adiția unui radical liber la o legătură dublă.

— *reacții de fotoeliminare*: de exemplu, s-a obținut efect laser atît în HF cît și în HCl, prin fotoliza $HClC = CHF$.

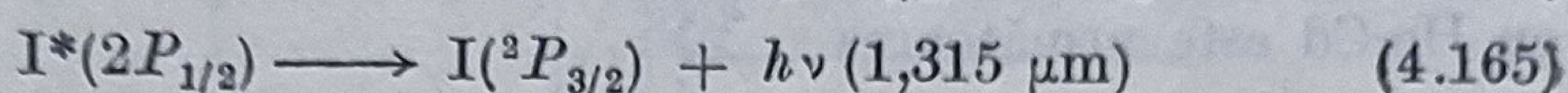
δ) *Reacțiile de fotodisociere.*

În reacțiile de fotosidociere se produce excitarea electronică a unei molecule, iar ulterior ruperea chimică a legăturii printr-un proces de disociere.

Exemplu: laserul cu iod



$$CH_3I + h\nu\,(270\ \text{nm}) \longrightarrow I^*(5p^2P_{1/2}) + CF_3 \qquad (4.164)$$



$$I^*(2P_{1/2}) \longrightarrow I(^2P_{3/2}) + h\nu\,(1{,}315\ \mu\text{m}) \qquad (4.165)$$

(tranziție între nivelele cu inversie de populație). (emisie laser)

Excitarea moleculelor se face optic, pe nivele electronice, prin reacția de disociere rezultînd inversia de populație între stările $^2P_{1/2}$ și $^2P_{3/2}$ ale iodului.

Alte tipuri de laseri cu reacții de fotodisociere: laserul cu Br ($\lambda = 2{,}713\mu$m); laserul cu Rb: 2,253 μm; laserul cu Cs: 3,095 μm; laserul cu NO; laserul cu CN.

b) *Producerea atomilor liberi pentru reacțiile de pompaj chimic se realizează prin:*

— metodă fotolitică (fotodisociere): prin iradiere în ultraviolet a moleculelor de F_2, acestea sînt disociate în atomii de F care inițiază reacția chimică;

— descărcări electrice (disociere prin ciocniri): atomii liberi necesari reacției de pompaj rezultă în principiu prin ciocniri între atomi și molecule;

— reacții chimice: reacțiile chimice de tipul



$$F_2 + NO \longrightarrow NOF + F$$

conduc la apariția atomilor liberi în mediul laser;

— disocieri termice (termodisociere);

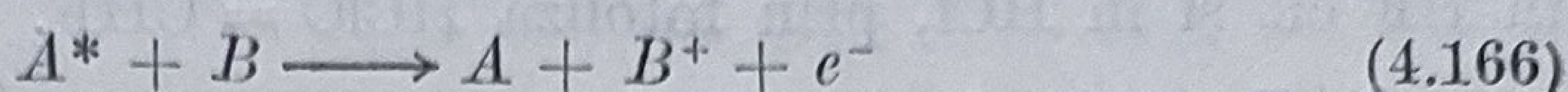
— evaporări prin încălzirea unei plăci metalice;

— injecția electronilor rapizi, (efectul electronilor injectați este același cu cel al electronilor care apar într-o descărcare electrică).

4.5.6. Excitarea prin efect Penning

Se întîlnește în cazul laserilor ionici. De exemplu, pentru laserul cu He-Cd, pentru tranzițiile joase ce pornesc de pe nivelul $2D_{3/2(5/2)}$ al Cd II (441,6 și 325 nm) procesul preponderent pentru realizarea inversiei de populație îl constituie ciocnirile de tip Penning între atomii metastabili de He și atomii de Cd. Pentru alte tranziții laser care pornesc de pe nivelele superioare ale metastabililor de heliu, mecanismele de excitare sînt reprezentate prin ciocniri cu transfer de sarcină între ionii de He și atomii de Cd și prin ciocniri electronice. Nivelele superioare ale ionului de Cd nu pot fi excitate Penning deoarece au energia mai mare decît a metastabililor de He.

Procesul Penning tipic are următoarea schemă

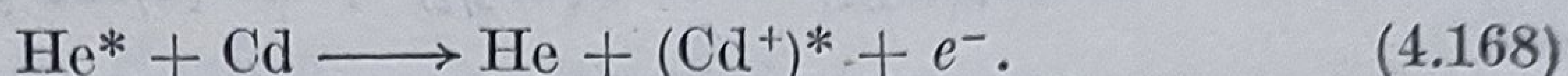


$$A^* + B \longrightarrow A + B^+ + e^- \tag{4.166}$$

în care ionul B^+ poate fi sau nu în stare excitată. Evident că trebuie îndeplinită condiția

$$(W_{excitare})_A > (W_{ionizare})_B. \tag{4.167}$$

Procesele Penning sînt nerezonante, deosebindu-se din acest punct de vedere de transferul rezonant de energie sau de transferul rezonant „de ionizare''. Schema tipică de ionizare prin efect Penning în cazul laserului cu He-Cd este următoarea



$$\text{He}^* + \text{Cd} \longrightarrow \text{He} + (\text{Cd}^+)^* + e^-. \tag{4.168}$$

Secțiunea eficace de excitare prin efect Penning este în jur de 10^{-15} cm^2.

4.5.7. Excitarea prin injecție

Excitarea prin injecție este metodă tipică de pompaj pentru laserii cu semiconductori.

Admițînd densitățile de stări în benzile de conducție și de valență ale semiconductorului ca fiind funcții cunoscute de energie, se pot exprima probabilitățile de ocupare a unui nivel energetic E din banda de conducție sau din cea de valență cu un electron, respectiv cu un gol, cu ajutorul expresiilor

$$f_c(E) = \frac{1}{1 + \exp\left[\dfrac{E - E_{F_v}}{kT}\right]} \tag{4.169}$$

respectiv

$$f_v(E) = \frac{1}{1 + \exp\left[\dfrac{E - E_{F_c}}{kT}\right]} \tag{4.170}$$

unde E_{F_c} și E_{F_v} sînt *cvasinivelele Fermi*, pentru banda de conducție, respectiv de valență. Aceste nivele definesc cvasiechilibrul din interiorul benzilor corespunzătoare, banda de conducție fiind ocupată pînă la cvasinivelul Fermi E_{F_c}, iar banda de valență fiind goală pînă la cvasinivelul Fermi E_{F_v}, în condițiile în care banda de conducție nu este în echilibru cu cea de valență). (Pentru un sistem la echilibru termic, $E_{F_c} = E_{F_v} = E_F$. Pentru sistemele excitate $E_{F_c} > E_{F_v}$ separarea dintre cvasinivelele Fermi fiind o măsură a gradului de excitare).

Modelarea cu ajutorul cvasinivelelor Fermi devine posibilă atunci cînd împrăștierile purtătorilor în interiorul benzilor implicate au loc foarte repede, în comparație cu procesele de recombinare bandă-bandă, astfel că stările din interiorul benzilor sînt considerate la echilibru (este, de exemplu, cazul materialelor semiconductoare cu un mare număr de purtători liberi).

Utilizarea joncțiunilor p-n pentru crearea inversiei de populație constituie metoda cea mai răspîndită pentru realizarea dispozitivelor laser cu materiale semiconductoare.

Atunci cînd joncțiunea este polarizată direct, electronii sînt injectați în zona de tip p a structurii, iar golurile în zona de tip n a acesteia, creîndu-se un exces de purtători peste valoarea de echilibru, care determină inversia de populație necesară pentru emisia stimulată.

Structura benzilor energetice pentru joncțiunea p-n polarizată direct este prezentată în fig. 4.14.

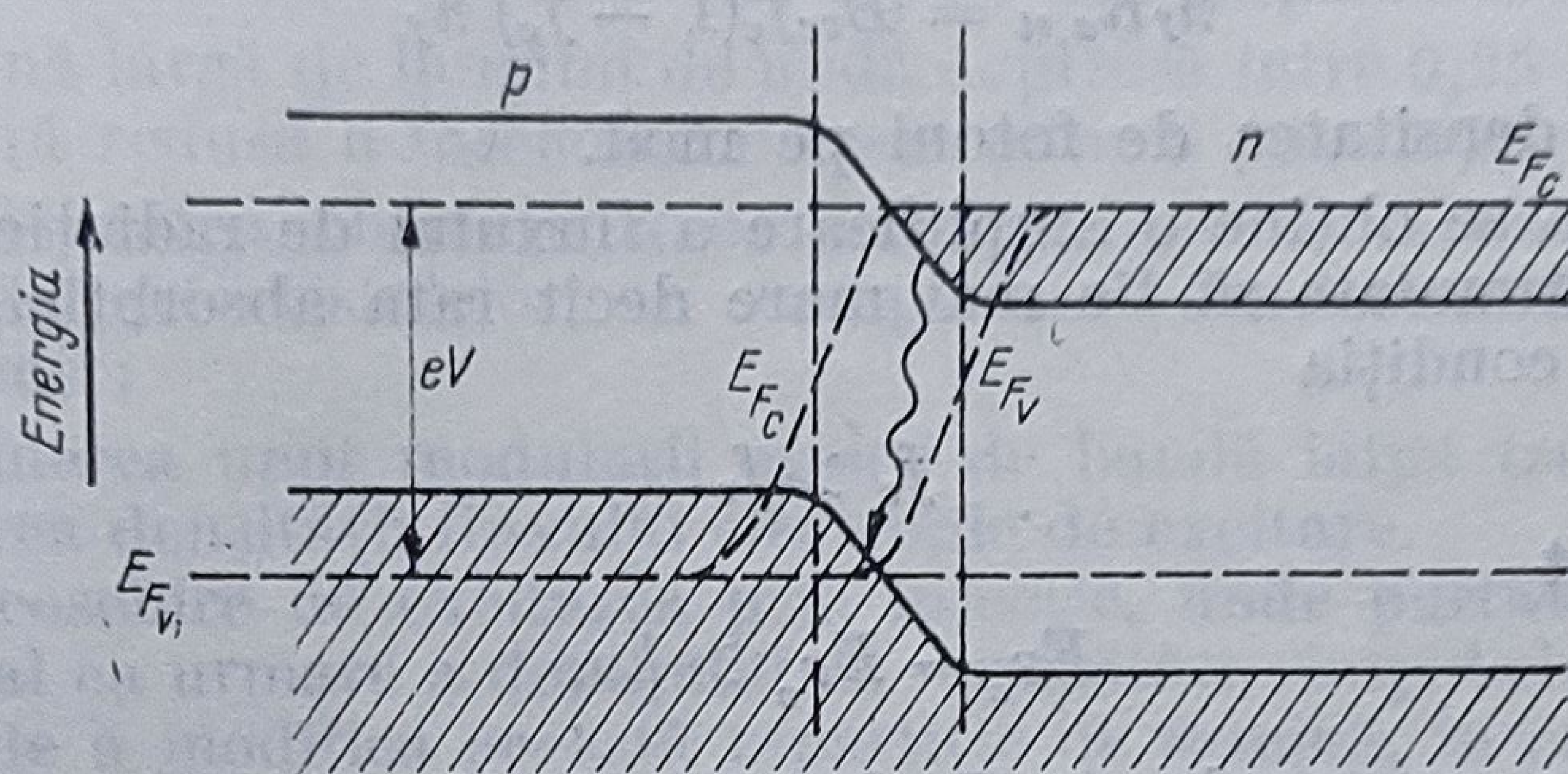


Fig. 4.14

Zona activă a structurii este determinată de stratul paralel cu joncțiunea în care are loc inversia de populație (se poate arăta că acest strat este poziționat în regiunea de tip p a structurii ca urmare a lungimilor de difuzie diferite pentru cele două categorii de purtători, precum și a proceselor de absorbție și recombinărilor neradiative, deși există injecție de purtători în ambele sensuri prin joncțiune).

Întrucît electronii injectați ocupă bandă de conducție pînă la cvasinivelul Fermi E_{F_c}, iar golurile ocupă banda de valență pînă la cvasinivelul Fermi E_{F_v}, fotonii cu energie mai mare decît E_i dar mai mică decît

$$\Delta E_F = E_{F_c} - E_{F_v} \tag{4.171}$$

nu pot fi absorbiți deoarece stările corespunzătoare din bandă de conducție sînt ocupate, astfel încît acești fotoni pot induce tranziții electronice din banda de conducție, pe nivelele libere din banda de valență, prin fenomenul de emisie stimulată. Prin urmare, condiția

$$h\nu < \Delta E_F \tag{4.172}$$

este fundamentală pentru fenomenul de emisie stimulată în semiconductori.

Procesele de absorbție și emisie stimulată pentru un material semiconductor cu bandă interzisă directă, funcție de densitățile de stări, sînt prezentate schematic în figura 4.15.

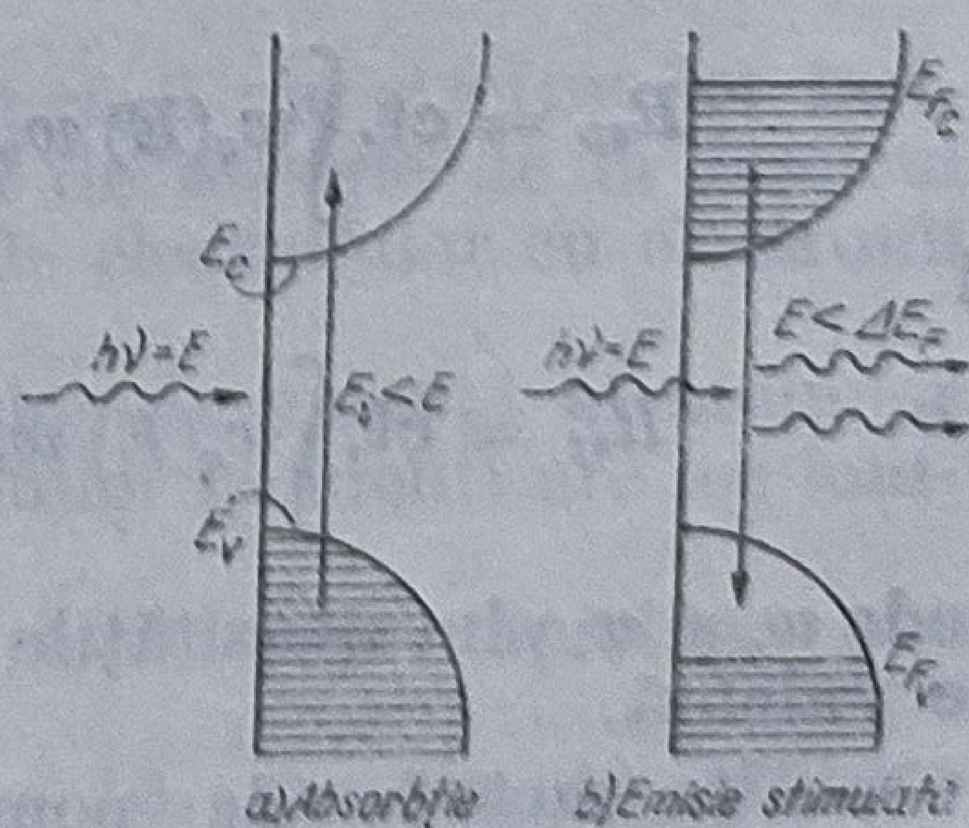


Fig. 4.15

Pentru analiza cantitativă a ratelor de tranziție se consideră cazul unui semiconductor cu o distribuție parabolică a stărilor.

Dacă se notează cu A_{cv}, B_{cv} parametrii de interacție ai tranzițiilor de emisie spontană, emisie stimulată și absorbție și cu f_e și

f_v probabilitățile de ocupare a stărilor energetice E_c și E_v, ratele de emisie spontană, respectiv de emisie stimulată și absorbție au expresiile

$$R_{e,sp} = A_{cv}(1 - f_v) \tag{4.173}$$

$$n_f R_{e,st} = B_{cv} f_c (1 - f_v)\ n_f \tag{4.174}$$

$$n_f R_{a,st} = B_{vc} f_v (1 - f_c)\ n_f \tag{4.175}$$

unde n_f este densitatea de fotoni pe mod.

Pentru a se obține o amplificare a fluxului de radiație, trebuie ca rata emisiei stimulate să fie mai mare decît rata absorbției, ceea ce se exprimă prin condiția

$$f_c > f_v \tag{4.176}$$

sau echivalent

$$E_{F_c} - E_{F_v} > h\nu. \tag{4.177}$$

Ținîndu-se seama de numărul mediu de fotoni pe mod la echilibru termic se poate scrie ecuația de bilanț pentru tranzițiile de emisie și absorbție, obținîndu-se egalitatea parametrilor de tranziție

$$B_{cv} = B_{vc}. \tag{4.178}$$

Se poate arăta că ratele emisiei spontane și stimulate pe unitatea de volum pentru tranzițiile bandă-bandă, au expresiile

$$R_{sp} = \frac{8\pi\ ne^2\nu}{m^2\hbar c^3} \sum |\mathbf{d}|^2\ [f_c(1 - f_v)] \tag{4.179}$$

$$n_f R_{st} = \frac{8\pi\ ne^2\nu n_f}{m^2\hbar c^3} \sum |\mathbf{d}|^2\ [f_c(1 - f_v) - f_v(1 - f_c)] \tag{4.180}$$

unde

$$R_{st} = R_{e,st} - R_{a,st} \tag{4.181}$$

este rata netă a emisiei stimulate, $\mathbf{d}$ elementul de matrice al tranziției, n_f densitatea de fotoni pe mod iar n indicele de refracție al mediului.

Admițîndu-se egalitatea elementelor de matrice pentru toate tranzițiile, rezultă pentru ratele de tranziție formulele :

$$R_{sp} = \text{ct.}\int w_c(E)\ w_v(E - h\nu)\ f_c(E)\ [1 - f_v(E - h\nu)]\ \mathrm{d}E \tag{4.182}$$

și

$$R_{st} = \text{ct.}\int w_c(E)\ w_v(E - h\nu)\ [f_c(E) - f_v(E - h\nu)]\ \mathrm{d}E \tag{4.183}$$

unde w_c și w_v sînt densitățile de stări pentru benzile de conducție respectiv de valență.

Alte metode de pompaj pentru laserii cu semiconductori sînt : excitarea optică, excitarea cu fascicule energetice de electroni, excitarea prin cîmpuri puternice etc.

4.5.8. Excitarea cu fascicule de electroni (bombardament electronic)

Metoda de excitare cu fascicule de electroni se utilizează pentru laserii cu semiconductori, alături de pompajul prin injecție, prezentînd în raport cu acesta din urmă, următoarele avantaje [69]:

— posibilitatea obținerii unor puteri în impuls foarte ridicate, de zeci de MW, cu o frecvență mare de repetiție a impulsurilor;

— o zonă largă de lungimi de undă cuprinsă între 0,25 μm și 15 μm, și o divergență redusă a fasciculului laser (cîteva minute);

— posibilitatea obținerii unor laseri pentru baleiaj cu fascicul electronic a suprafeței cristalelor, cu comportare cvasicontinuă, cu puteri de zeci de wați;

— obținerea unor modulații optice de bandă largă (zeci de GHz), prin modularea densității fluxului electronic de excitare.

Spre deosebire de excitarea prin injecție, unde purtătorii în exces apar în cristal ca urmare a dopajului cu impurități, cîmpul electric aplicat avînd rolul de a modifica această repartiție de sarcină, în cazul laserilor excitați cu fascicule de electroni, apariția purtătorilor de neechilibru, se datorește transferului de energie de la electronii primari ai fasciculului către electronii și golurile rețelei cristaline.

Prin urmare, dopajul cu impurtități al materialului semiconductor, nu mai constituie pentru laserii pompați cu fascicule de electroni o condiție absolut necesră.

Studiul mecanismului de interacție al fasciculului electronic cu rețeaua cristalină necesită evaluarea distribuției spațiale a purtătorilor de sarcină în afara echilibrului.

S-au pus în evidență trei tipuri de procese de interacție caracteristice mecanismului de excitare prin bombardament electronic:

— procese de ionizare care determină reducerea energiei electronilor din fascicul;

— procese de excitare prin trecerea electronilor din banda de valență în banda de conducție și crearea de perechi electron-gol. Aceste procese au loc atunci cînd energia electronilor din fascicul este comparabilă cu lărgimea benzii interzise a semiconductorului, nemaifiind posibile procese de ionizare a straturilor electronice interne;

— procese de interacție a electronilor cu rețeaua cristalină și termalizarea electronilor prin emisie de fononi.

Evident că aceste procese au loc prin reducerea în „trepte" a energiei electronilor din fascicul.

a) *Studiul proceselor de ionizare.* Pentru energii ale electronilor incidenți ridicate (zeci și sute de keV) transferul de energie de la fascicul la mediul se face prin ciocnirile coulombiene ale electronilor cu electronii legați ai cristalului.

Deoarece energia de legătură a electronilor de valență ai atomilor rețelei este mult mai mică decît energia electronilor incidenți are loc ionizarea acestora.

Pierderile de energie prin ionizare a electronilor rapizi se pot calcula cu formula lui G. Bethe.

Se constată că pentru elemente cu $Z < 15$, energia de ionizare $E_i \simeq 10,5Z$ eV iar pentru elemente cu $Z > 15$, $E_i = 9Z$ eV. Calculul exact al densităților de ionizare este dificil datorită proceselor complexe de

difuzie multiplă și ciocniri elastice pe care le suferă electronii din fasciculul energetic.

Calitativ, dependența densității pierderilor de ionizare funcție de adîncimea de pătrundere în cristal, este prezentată (în coordonate reduse) în fig. 4.16, unde

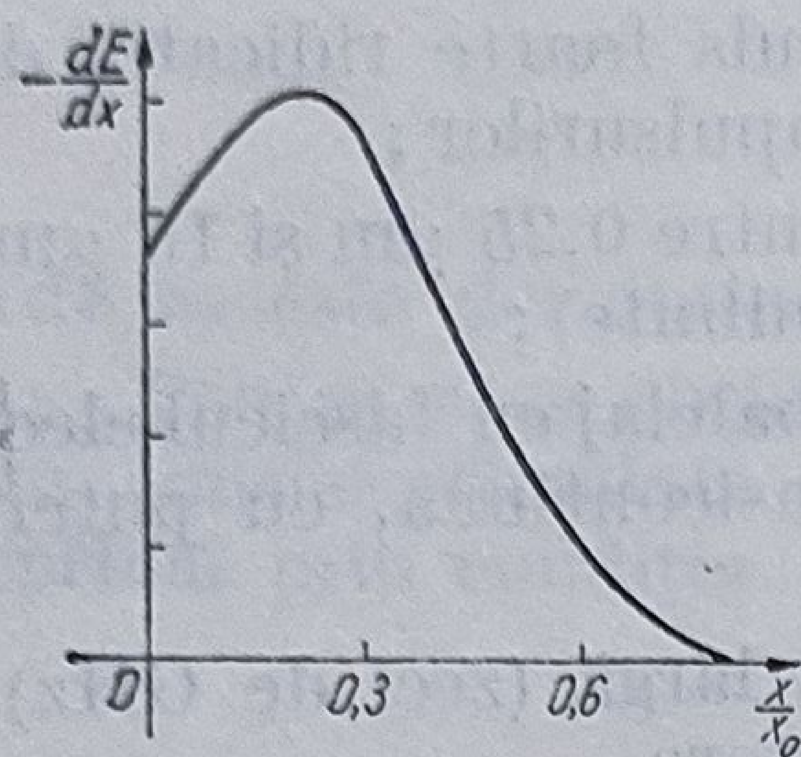


Fig. 4.16

$$x_0 = \int_0^{E_0} \left(\frac{dE}{dx}\right)^{-1} dE \tag{4.184}$$

reprezintă adîncimea maximă de pătrundere în mediu (pentru x în linie dreaptă) iar E_0 energia cinetică inițială a electronilor.

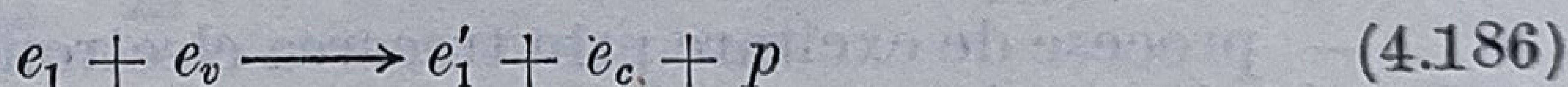
În gama de energii cuprinse între 50 keV și 200 keV,

$$x_0 = \alpha E_0 + \beta E_0^2 \tag{4.185}$$

α și β fiind constante depinzînd de material.

b) *Generarea de perechi electron-gol.* Atunci cînd energia electronilor scade ajungînd comparabilă cu energia de ionizare E_i, ($\sim 200 \div 300$ keV) procesul de multiplicare „în avalanșă" al electronilor continuă printr-un alt mecanism. Electronii rapizi care au luat naștere nu pot ioniza în continuare atomii rețelei, dar pot ciocni electronii din banda de valență pe care-i transferă în bandă de conducție. Aceste procese se produc pînă cînd energia purtătorilor scade sub o valoare egală cu lărgimea benzii interzise după care procesele care au loc sînt de *termalizare* fără variația numărului de purtători.

Energia necesară formării perechilor electron-gol se poate calcula utilizîndu-se legile de conservare ale energiei și impulsului. Schema proceselor de ciocnire prin care se formează perechi electron-gol este următoarea



$$e_1 + e_v \longrightarrow e_1' + e_c + p \tag{4.186}$$

unde e_1 este electronul primar, e_v un electron din banda de valență, e_1' electronul secundar, e_c un electron din banda de conducție, iar p un gol din banda de valență. Se poate arăta că energia minimă (de prag) necesară unei particule pentru a avea loc un proces după schema (4.186) este superioară lărgimii benzii interzise. Astfel, dacă particula primară este electron

$$(E_e)_{prag} = E_i\left(1 + \frac{m_e}{m_e + m_g}\right), \tag{4.187}$$

m_e fiind masa electronului, iar m_g masa golului.

Dacă particula primară este un gol

$$(E_g)_{prag} = E_i\left(1 + \frac{m_g}{m_e + m_g}\right). \tag{4.188}$$

Se poate arăta, de asemenea, că eficiența maximă a unui laser cu excitație electronică este de aproximativ 30%, adică pentru formarea unei perechi electron-gol se utilizează în toate procesele care au loc o energie de aproximativ trei ori mai mare decît lărgimea benzii interzise.

4.6. Caracteristici constructive și funcționale ale diferitelor tipuri de laseri

4.6.1 Laserul cu He-Ne

Laserul cu He-Ne, realizat în anul 1961 de către Javan și alții [13] a fost primul laser funcționînd cu undă continuă, fiind totodată și primul laser cu gaz din lume. La puțin timp după raportarea sa pe plan mondial, în anul 1962, a fost construit primul laser cu He-Ne și în țara noastră, România fiind astfel printre primele țări care dețineau dispozitive de acest tip.

Cele mai importante linii spectrale pe care funcționează laserul cu He-Ne sînt cele ale neonului avînd $\lambda = 0{,}6328$ μm, 1,15 μm și 3,38 μm, numărul tranzițiilor laser cunoscute ale neonului fiind mult mai numeroase.

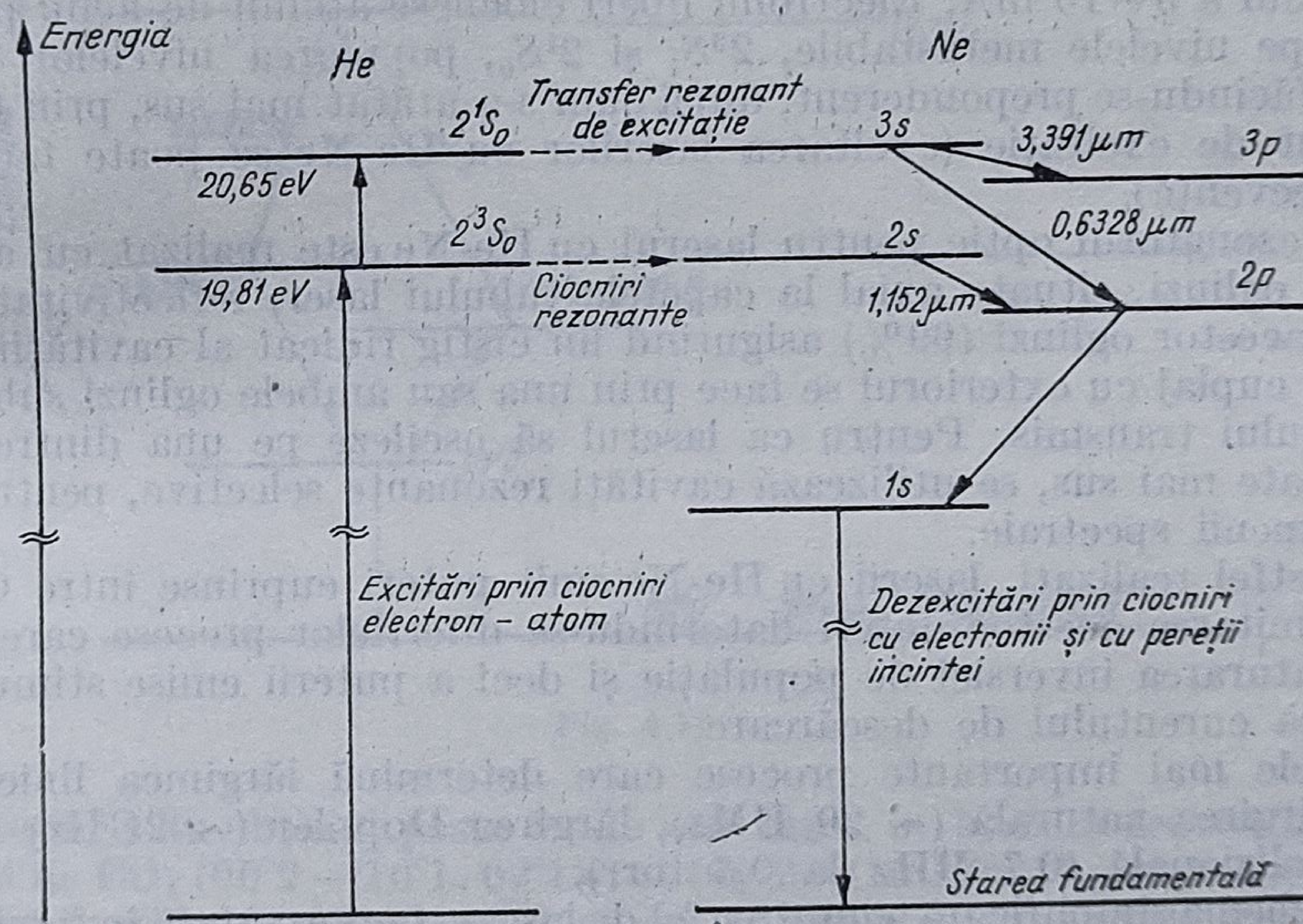


Fig. 4.17

Schema simplificată a nivelelor energetice implicate în aceste tranziții este prezentată în fig. 4.17. Faptul că între nivelele 2^3S și 2^1S ale heliului și nivelele $2s$ respectiv $3s$ ale neonului există o bună coincidență face posibil transferul rezonant de excitație între nivelele corespunzătoare ale heliului (metastabile), care sînt excitate direct prin ciocniri electron-atom din starea fundamentală și nivelele specificate mai sus ale neonului determinînd *inversii de populație* între stările $2s - 2p$, $3s - 2p$ și $3s - 3p$ ale neonului și emisia laser prin tranziții stimulate între aceste stări. De exemplu, starea metastabilă a heliului 2^3S, are un timp de viață $\tau = 100 - 200$ μs, în timp ce pentru nivelul laser superior $2s$ timpul de viață este $\tau \simeq 100$ ms iar pentru nivelul laser inferior, $\tau \simeq 10 - 20$ ns.

Pe lîngă transferul rezonant de excitație, care constituie mecanismul principal în realizarea inversiei de populație, excitarea nivelelor laser superioare ale neonului se poate face și direct prin ciocniri electronice.

Linia laser avînd $\lambda = 1{,}152$ μm este cea mai puternică din cele 30 de tranziţii $2s - 2p$ permise în neon între 0,88 şi 1,171 μm.

În ceea ce priveşte tranziţiile $3s - 2p$ pot apare 89 linii diferite, situate între 0,5433 şi 0,7305 μm, pe cînd pentru tranziţiile $3s - 3p$ sînt cunoscute 12 linii situate între 2,78 şi 3,98 μm.

Constructiv, laserul cu He-Ne tipic este realizat sub forma unui tub din sticlă pyrex umplut cu un amestec de He : Ne = (7 — 10) : 1, la o presiune totală de cîţiva torr. Tubul laser are încorporaţi doi electrozi, un anod din nichel şi un catod din aluminiu, trecerile prin sticlă fiind făcute cu ajutorul unor bare de wolfram. Un astfel de tub ,,de descărcare'' are lungimea cuprinsă între 0,1 şi 2 m şi diametrul cuprins între 0,8 — 1,4 mm, extremităţile fiind prevăzute cu ferestre din cuarţ optic, lipite la unghi Brewster.

Pompajul unui astfel de laser se face cu ajutorul unei descărcări în curent continuu care produce electroni şi ioni liberi în gaz, tensiunea de alimentare find de ordinul a 2—3 kV, iar curentul descărcării fiind de ordinul a 5—10 mA. Electronii liberi ciocnesc atomii de heliu pe care-i excită pe nivelele metastabile, 2^3S_1 şi 2^1S_0, popularea nivelelor $3s$ şi $2s$ ale Ne făcîndu-se preponderent, după cum s-a arătat mai sus, prin transfer rezonant de excitaţie (excitarea laserilor cu He-Ne se poate face şi în radiofrecvenţă).

Rezonatorul optic pentru laserul cu He-Ne este realizat cu ajutorul a două oglinzi, situate axial la capetele tubului laser, reflectivitatea ridicată a acestor oglinzi (99%) asigurînd un cîştig ridicat al cavităţii optice al cărei cuplaj cu exteriorul se face prin una sau ambele oglinzi sub forma fasciculului transmis. Pentru ca laserul să oscileze pe una dintre liniile prezentate mai sus, se utilizează cavităţi rezonante selective, pentru diferite domenii spectrale.

Astfel realizaţi, laserii cu He-Ne emit puteri cuprinse între 0,5÷50 mW, limitarea acestor puteri datorîndu-se diferitelor procese care determină saturarea inversiei de populaţie şi deci a puterii emise stimulat, cu creşterea curentului de descărcare.

Cele mai importante procese care determină lărgimea liniei laser sînt : lărgirea naturală (~ 20 HMz), lărgirea Doppler (~ 2GHz) şi lărgirea colizională (0,7 MHz la 0,5 torr).

Schema simplificată a unui astfel de laser este prezentată în figura 4.18.

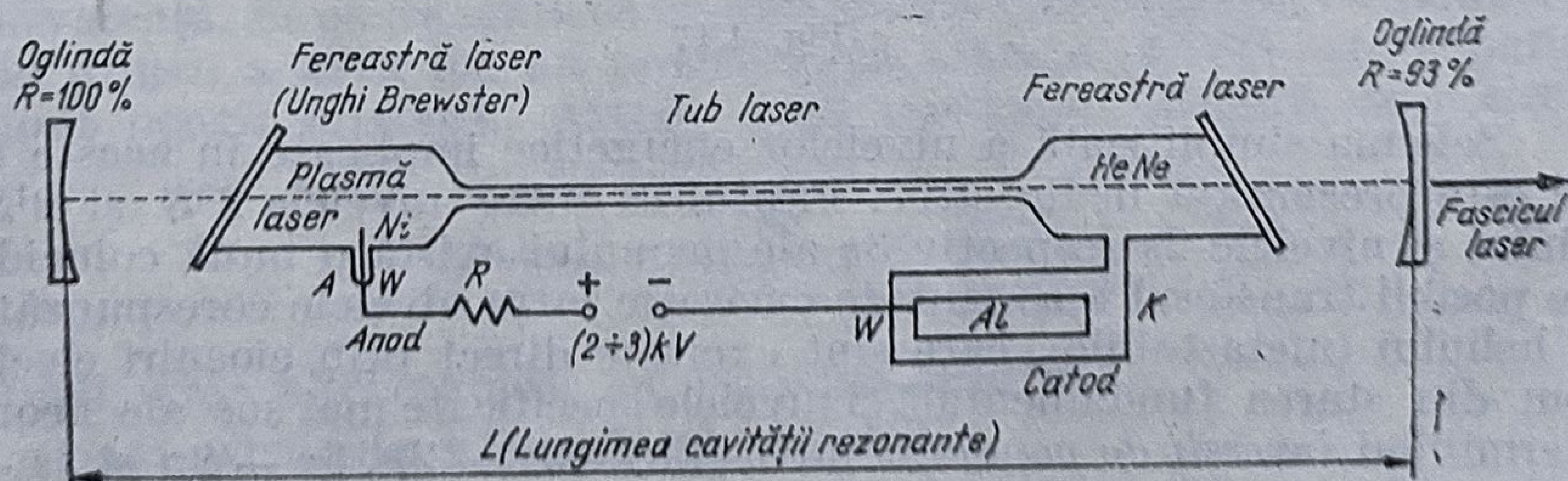


Fig. 4.18

Parametrii tipici pentru laserul cu He-Ne sînt : $\omega \simeq 3 \cdot 10^{15}$ rad/s, $\Delta\omega_e \simeq 5 \cdot 10^9$ rad/s, $T_1 \simeq 10^{-7}$ s, $\tau_e \simeq 10^{-7}$ s,

$$|\mathbf{d}_{12}| = 1{,}4 \text{ debye} = \frac{1{,}4 \cdot 10^{-29}}{3} \text{ C·m.}$$

4.6.2. Laserul cu CO_2

Primul laser cu CO_2 a fost realizat în anul 1964 de către C. N. Patel, utilizînd o descărcare în CO_2 pur. În prezent se realizează laseri cu CO_2 avînd puteri de peste 100 kW în funcționare continuă, cu eficiențe de 20–30%.

Primele linii laser observate în CO_2 aparțin benzilor „regulate" ale acestui tip de moleculă și corespund tranzițiilor de vibrație-rotație de 10,6 μm ($00^0 1 - (10^0 0, 02^0 0)_I$) și 9,4 μm ($00^0 1 - (10^0 0, 02^0 0)_{II}$), ale moleculei în starea electronică fundamentală.

Schema acestor nivele vibraționale (joase) ale moleculei de CO_2 și tranzițiile laser observate sînt prezentate în figura 4.19.

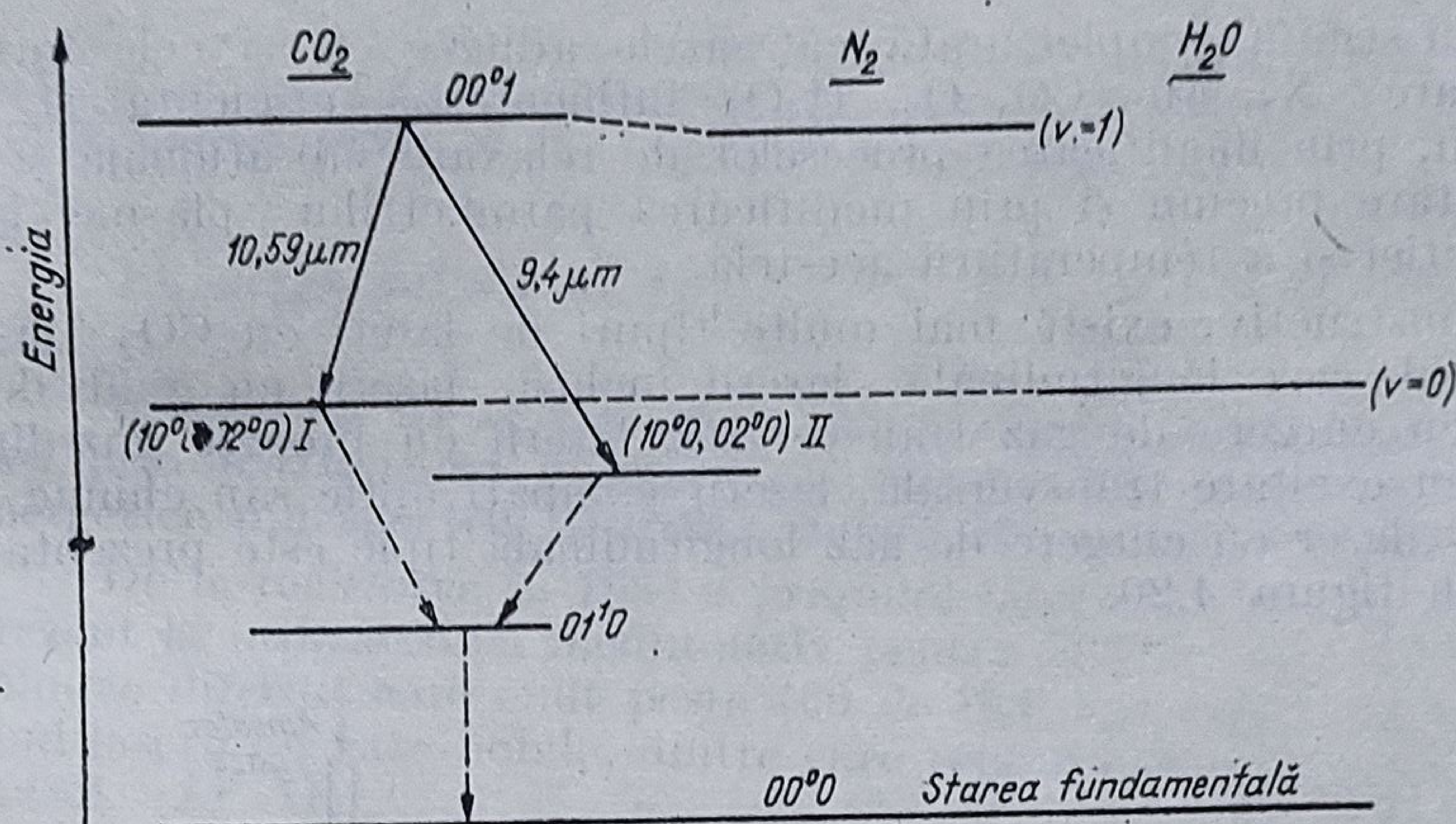


Fig. 4.19

Ulterior s-au obținut peste 80 de linii laser în benzile secvențiale ale moleculei de CO_2 ($00^0 2 - (10^0 1, 02^0 1)_I$) și ($00^0 2 - (10^0 1, 02^0 1)_{II}$) și de asemenea în benzile superioare avînd originea pe nivelele $00^0 3$ și $00^0 4$, în benzile fierbinți ($01^1 1 - (11^1 0, 03^1 0)_I$) și ($01^1 1 - (11^1 0, 03^1 0)_{II}$) etc.

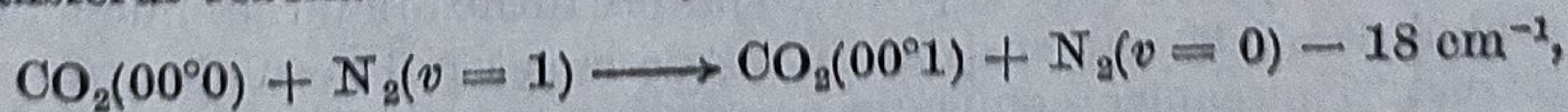
Pentru funcționarea laserului cu CO_2, în procesele de excitare-dezexcitare un rol important revine gazelor aditive, azotul și heliul, aflate de regulă în proporții $CO_2 : N_2 : He = 1 : 1 : 6$, presiunea totală fiind de 40 torr.

Principalele căi de excitare a nivelului laser superior pentru tranzițiile din benzile regulate $00^0 1$ sînt: excitarea directă prin ciocniri electronice, prin procese de tipul



$$CO_2(00^0 0) + e^- \longrightarrow CO_2(00^0 1) + e^-$$

și transferul rezonant de excitație între $N_2(v = 1)$ și $CO_2(00^0 0)$



$$CO_2(00^0 0) + N_2(v = 1) \longrightarrow CO_2(00^0 1) + N_2(v = 0) - 18\ cm^{-1},$$

ca proces dominant pentru laserii cu CO_2 cu descărcare, excitarea vibrațională a moleculelor de azot făcîndu-se, de asemenea, prin ciocniri electronice. În plus, oxidul de carbon format în descărcarea electrică joacă un rol similar cu cel al azotului în excitarea nivelului laser superior.

Alături de procesele de excitare, pentru crearea inversiei de populație un rol important revine proceselor de relaxare vibrațională, funcționarea eficientă a laserului implicînd condiția

$$\tau_s^r \gg \tau_s^c \gg \tau_i^c$$

unde τ_s^r este timpul de viață al nivelului laser superior, τ_s^c — timpul de viață colizional al acestui nivel, iar τ_i^c timpul de viață colizional al nivelului laser inferior.

Rolul heliului ca gaz aditiv este determinat de eficiența mult mai ridicată a proceselor de relaxare a nivelului laser inferior produse de ciocnirea CO_2—He în comparație cu ciocnirea CO_2—CO_2 sau CO_2—N_2, precum și de favorizarea ratei de excitare a moleculelor de CO_2 pe nivelul laser superior 00^01.

Un studiu complet arată că gazele aditive cît și cele formate în descărcare (N_2, He, CO, O_2, H_2O) influențează eficiența și puterea laserului, prin modificarea proceselor de relaxare vibrațională și a celor de excitare precum și prin modificarea parametrilor plasmei laser, a compoziției și a temperaturii acesteia.

Constructiv, există mai multe tipuri de laseri cu CO_2: laserii cu curgere de gaz longitudinală, laserii închiși, laserii cu ghid de undă, laserii cu curgere de gaz transversală, laserii cu procese gaz-dinamice, laserii cu excitare transversală, laserii pompați optic sau chimic etc.

Un laser cu curgere de gaz longitudinală tipic este prezentat schematic în figura 4.20.

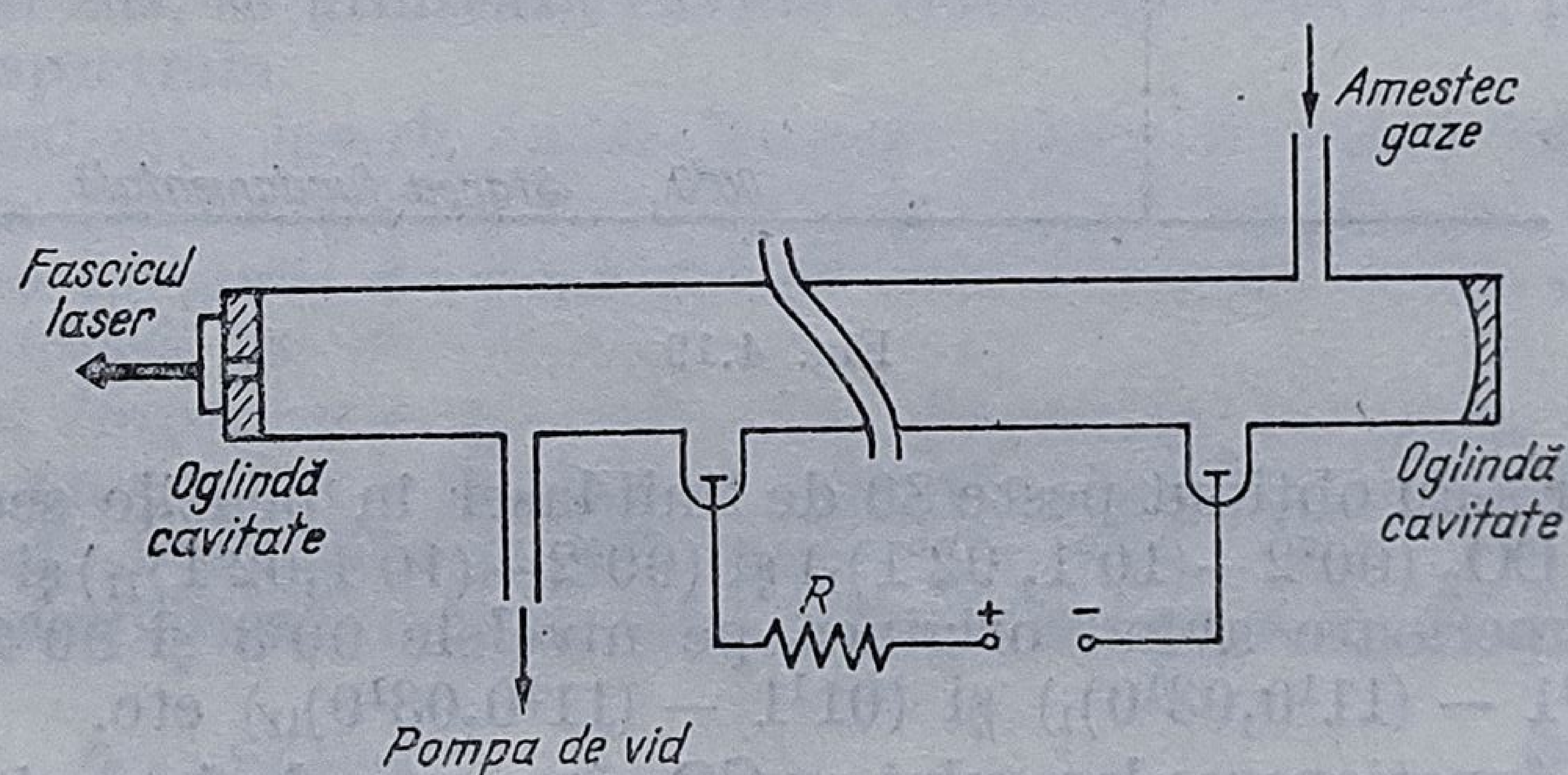


Fig. 4.20

Amestecul de CO_2, N_2 și H_2 în proporții determinate, circulă cu viteză redusă printr-un tub din sticlă pyrex, de cîțiva cm diametru, răcit cu apă care curge la rîndul său printr-o cămașă de sticlă coaxială cu tubul de descărcare.

Tubul este excitat în curent continuu sau alternativ prin intermediul a doi electrozi, tensiunea electrică folosită fiind de 10—15 kV iar curentul descărcării de 25—150 mA, pentru o putere furnizată de laser de ~ 150 W.

Tubul de sticlă este susținut etanș de capetele laserului, care reprezintă structuri mecanice compacte ce servesc ca suporți pentru oglinzile reglabile ale laserului, avînd conducte de acces pentru amestecul gazos și apa de răcire. Oglinzile laser sînt realizate din oțel inoxidabil fiind acoperite cu un strat subțire de aur, una dintre ele find găurită central pentru a permite cuplajul cu exteriorul. Etanșeitatea la vid a cavității, la capătul

cuplat cu exteriorul este asigurată de o fereastră de sare (NaCl) lipită de oglindă.

Laserii cu CO_2 se pot realiza și sub formă închisă, portabilă, dacă se iau măsuri speciale pentru a împiedica disocierea moleculelor de CO_2, prin ciocniri electronice și a menține concentrația amestecului nemodificată.

În acest scop se utilizează o a treia cămașă de sticlă al cărei volum, de peste 50 de ori mai mare decît cel al descărcării active, constituie un adevărat rezervor pentru amestec. Laserii închiși cu CO_2 produși de IFTAR furnizează puteri de 50—100 W , pentru durate de funcționare depășind 1000 de ore. Pe lîngă laserii cu CO_2 cu funcționare continuă o largă dezvoltare au căpătat-o laserii cu CO_2 în impulsuri, de energii ridicate, reprezentativ fiind laserul cu CO_2 cu excitație transversală la presiune atmosferică (CO_2—*TEA*). Un astfel de laser, cu descărcare controlată cu fascicule de electroni, poate furniza energii de pînă la 100 kJ, cu frecvență ridicată de repetiție a impulsurilor.

4.6.3. Laserul cu Ar II

Laserul cu Ar II face parte din categoria laserilor ionici, caracterizați prin participarea la realizarea inversiei de populație a unor nivele energetice din spectrul atomilor simplu sau multiplu ionizați.

De la realizarea în 1964 a primului laser ionic cu Hg II s-a ajuns în prezent la utilizarea ca mediu activ pentru laserii ionici a 32 de elemente chimice diferite, care emit peste 400 de linii spectrale, cei mai dezvoltați fiind laserii cu gaze nobile, dintre care reprezentativ este laserul cu argon ionizat (Ar II).

Laserul cu argon ionizat este cel mai puternic laser în vizibil, radiația coerentă fiind emisă, pentru regimul de funcționare în undă continuă, simultan pe 11 linii spectrale cuprinse între 0,5287 μm și 0,4370 μm, cele mai intense fiind liniile avînd $\lambda = 0,5145$ μm și 0,4880 μm (peste 85% din putere).

Puterile maxime emise de laserii cu argon ionizat sînt de 300 W în vizibil și de peste 30 W în ultraviolet, eficiența maximă atinsă fiind de 0,16%. În tubul de descărcare al laserului cu argon ionizat apoximativ 1% din atomi sînt ionizați, astfel că prin ciocniri pot trece în stări ionice excitate. Principalele mecanisme de excitare pentru laserul cu argon ionizat sînt: ciocnirile electronice cu starea fundamentală a ionului (fig. 4.21), ciocnirile electronice cu starea fundamentală a atomului, excitarea prin intermediul stărilor metastabile ale ionilor și cascadele radiative de pe nivelele superioare.

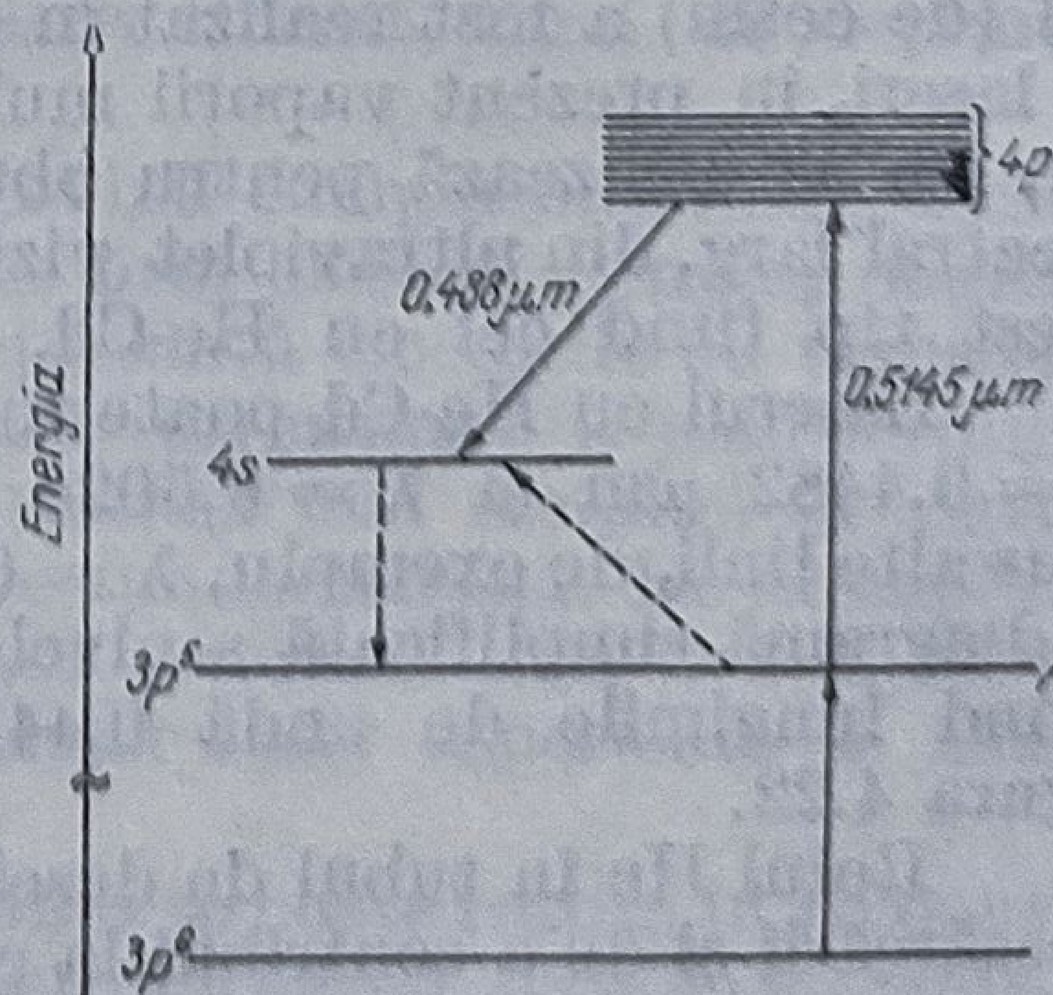


Fig. 4.21

În cazul excitării prin ciocniri electronice cu starea fundamentală a ionului (ca și în cazul cascadelor radiative de altfel) populația nivelului laser superior este proporțională cu pătratul densității de curent ($N_2 \sim j^2$),

pe cînd în cazul celorlalte mecanisme de excitare, populaţia nivelului laser superior este proporţională cu densitatea de curent. Dependenţa pătratică a populaţiei nivelului $4p$ de **j**, demonstrată pentru condiţii experimentale foarte diferite, arată rolul preponderent al mecanismelor de excitare corespunzătoare.

Nivelul laser inferior $4s$ se dezexcită radiativ pe starea fundamentală a atomului ionizat mult mai rapid decît excitarea sa prin ciocniri electronice.

Constructiv, laserii cu argon ionizat sînt realizaţi sub forma unor tuburi de descărcare, care trebuie să reziste la densităţile mari ale curentului de excitare (25 —400 A). Se pot folosi în acest scop capilare din cuarţ sau ceramică, răcite cu apă şi eventual cîmpuri magnetice axiale (1—1,5 kGs) care să reducă rata de difuzie a electronilor spre pereţi, prin confinarea descărcării în centrul tubului.

Catozii laserilor cu argon trebuie să asigure curentul de emisie ridicat şi să reziste la bombardamentul ionic din tub, astfel că se construiesc sub forma unor suporţi de nichel sau wolfram impregnaţi cu oxizi de Ba sau Co. Anozii, răciţi cu apă, se realizează din cupru, grafit, tungsten etc. Diametrul tuburilor de descărcare sînt cuprinse între 1—12 mm presiunile optime ale gazului fiind funcţie de diametru (100—400 mtorr; scad cu creşterea diametrului).

Puterile surselor de alimentare ale laserilor cu argon ionizat sînt ridicate (160 kW, 400 A, 400 V, pentru 100 W putere emisă).

În variantele constructive cu catod cavitar se folosesc drept gaze aditive heliul sau neonul. Alţi laseri ionici tipici sînt laserii cu kripton (K II), xenon (Xe II), Ar III etc., sau laserii în care mediul activ este o combinaţie a acestor gaze.

Laserul cu kripton emite 15 linii spectrale în vizibil şi infraroşu(cea mai intensă linie avînd $\lambda = 0{,}6471$ μm), iar laserul cu Xe emite 5 linii în vizibil (0,4954 — 0,5395 μm). În ultraviolet s-au obţinut liniile Kr IV ($\lambda = 0{,}195$ μm şi $\lambda = 0{,}219$ μm) şi linia Ne III avînd $\lambda = 0{,}206$ μm.

Laserii cu argon ionizat şi alţi laseri ionici se utilizează în holografie, sisteme de afişare, pompajul optic al laserilor cu coloranţi etc.

4.6.4. Laserul cu He-Cd

Vaporii metalici reprezintă primul tip de mediu laser propus de către Schawlow şi Townes în anul 1958. Deşi primul laser cu vapori metalici (de cesiu) a fost realizat în anul 1962, deci după realizrea altor tipuri de laseri, în prezent vaporii multor metale cum ar fi Cd, Cu, Se, Zn, Tl, Sn, Pb se utilizează pentru obţinerea radiaţiei coerente, pe un domeniu spectral larg, din ultraviolet vizibil şi infraroşu, cel mai cunoscut laser de acest tip fiind cel cu He-Cd.

Laserul cu He-Cd poate funcţiona în continuu (liniile $\lambda = 0{,}4416$ μm, $\lambda = 0{,}4482$ μm şi $\lambda = 0{,}5026$ μm) sau în impulsuri (liniile de mai sus plus alte linii, de exemplu, $\lambda = 0{,}5337$ μm, $\lambda = 0{,}5378$ μm, $\lambda = 0{,}839$ μm). O diagramă simplificată a nivelelor energetice implicate pentru tranziţiile avînd lungimile de undă 0,4416 μm şi 0,3250 μm este prezentată în figura 4.22.

Rolul He în tubul de descărcare este acela de a asigura stabilitatea descărcării şi de a contribui la excitarea nivelelor ionice ale Cd II pentru crearea inversiei de populaţie. De remarcat că acelaşi rol poate fi jucat şi de alte gaze cum ar fi Ne, Ag, Xe.

Funcţie de tranziţiile laser implicate, excitarea laserului cu He-Cd se poate face prin ciocniri de tip Penning sau prin ciocniri cu transfer de sarcină.

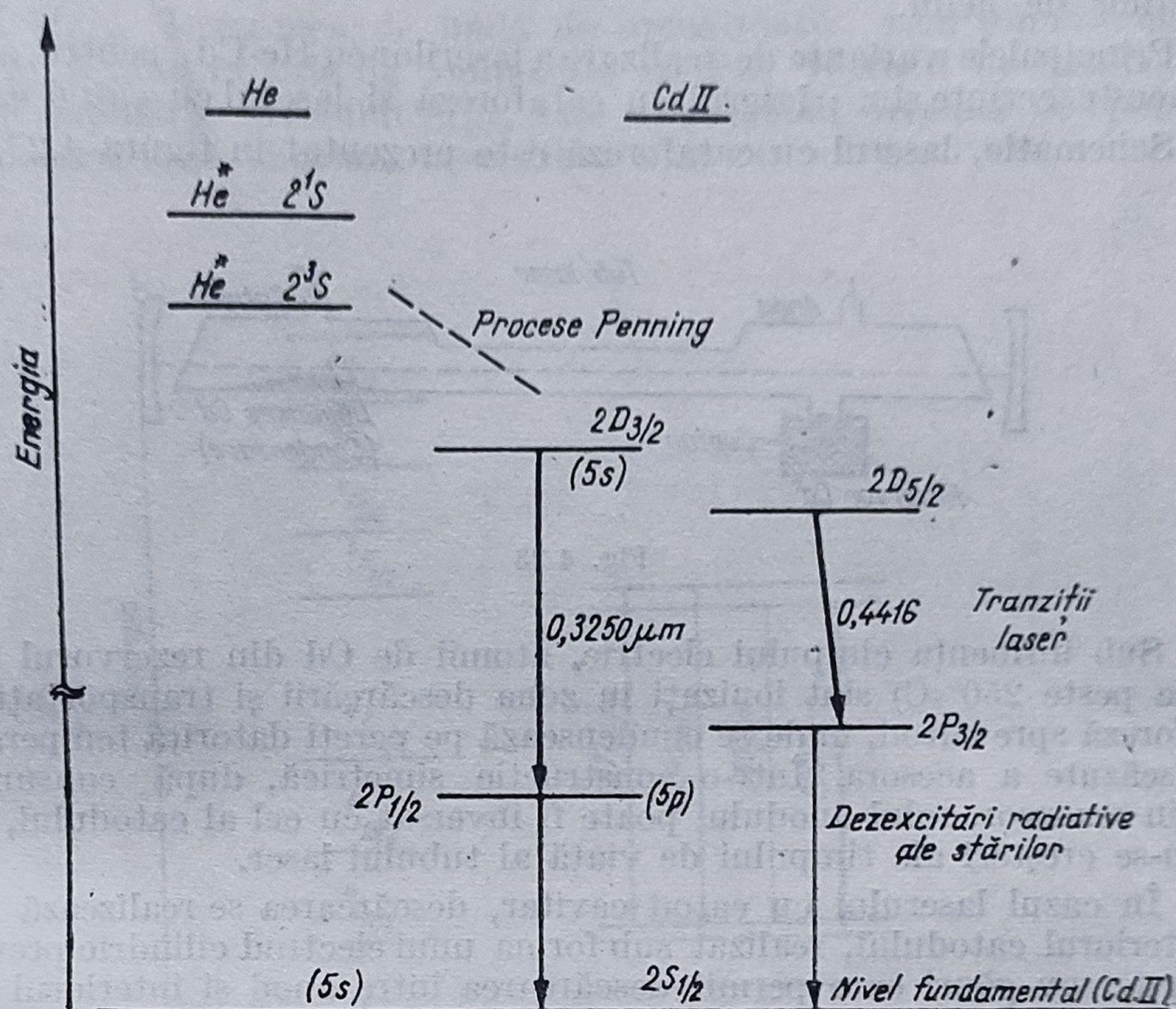


Fig. 4.22

Se ştie că procesele Penning sînt procese nerezonante de tipul



$$He^* + Cd \longrightarrow He + (Cd^+)^* + e^-,$$

energia stărilor metastabile 2^1S sau 2^3S ale atomilor excitaţi de He fiind mai mare decît cea necesară pentru ionizarea şi excitarea atomilor de Cd. Acest mecanism de inversie de populaţie a fost propus pentru explicarea oscilaţiei pe linia $\lambda = 0{,}4416$ a Cd, de către Silfast, fiind în deplină concordanţă cu experimentul.

Nivelele superioare ale ionului de Cd, avînd energia mai mare decît cea a metastabililor de He, nu pot fi excitate prin ciocniri Penning astfel că în acest caz mecanismul de excitare îl reprezintă ciocnirile cu transfer de sarcină între ionii de He şi atomii de Cd. Ca urmare a transferului de sarcină şi de energie care are loc, se formează ioni metalici în stare excitată şi atomi ai gazului „buffer'' în stare fundamentală. De exemplu, pentru liniile $\lambda = 0{,}635$ μm $\lambda = 0{,}5337$ μm, $\lambda = 0{,}7237$ μm, $\lambda = 0{,}4882$ μm, $\lambda = 0{,}8067$ μm şi altele, excitarea nivelelor laser superioare se face prin ciocniri cu transfer de sarcină.

Oscilaţia laserului cu He-Cd pe diferite linii se poate realiza în coloana pozitivă sau în regiunea luminii negative (laserii cu catod cavitar) mecanismele de excitare fiind în esenţă aceleaşi.

Realizarea constructivă a laserilor cu He-Cd, necesită măsuri adecvate pentru omogenizarea descărcării, evitarea depunerii vaporilor metalici pe componentele optice, împiedicarea impurificării amestecului și a pierderilor de heliu.

Principalele variante de realizare a laserilor cu He-Cd, pentru a satisface aceste cerințe sînt : laserul cu cataforeză și laserul cu catod cavitar.

Schematic, laserul cu cataforeză este prezentat în figura 4.23.

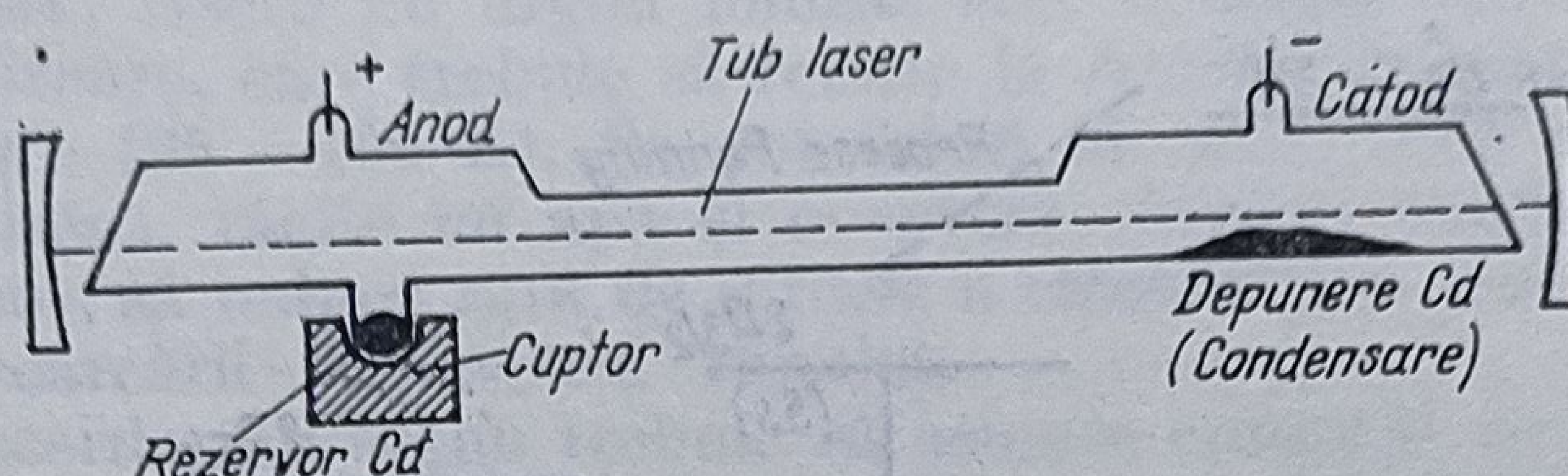


Fig. 4.23

Sub influența cîmpului electric, atomii de Cd din rezervorul încălzit (la peste 250° C) sînt ionizați în zona descărcării și transportați prin cataforeză spre catod, unde se condensează pe pereți datorită temperaturii mai scăzute a acesora. Într-o construcție simetrică, după consumarea Cd din rezervor, rolul anodului poate fi inversat cu cel al catodului, obținîndu-se creșteri ale timpului de viață al tubului laser.

În cazul laserului cu catod cavitar, descărcarea se realizează chiar în interiorul catodului, realizat sub forma unui electrod cilindric prevăzut cu fante sau găuri care permit descărcarea între anod și interiorul catodului precum și pătrunderea vaporilor metalici din interiorul catodului.

Generarea atomilor metalici în descărcarea se mai poate produce, pe lîngă evaporare, și prin procese cum ar fi pulverizarea catodului (metale nevolatile, Au, Ag, Ni) sau prin disocierea termică a diferiților compuși chimici (de exemplu CdI_2). Puterile emise de laserii cu He-Cd sînt de ordinul 50—200 mW, curenții descărcării în jur de 100 mA, presiunea vaporilor de Cd în jur de 5—10 mtorr, fiind funcție de temperatură, iar presiunea heliului fiind de 4—10 torr.

Alți laseri cu vapori metalici sînt laserii cu Cu, Zn, Se sau cu două tipuri de vapori metalici simultan. De exemplu, laserul cu He-Se emite în undă continuă peste 46 linii.

În general, laserii cu vapori metalici au zgomot ridicat ca urmare a fluctuațiilor existente atît în densitatea atomilor metalici cît și în populațiile stărilor metastabile ale heliului.

4.6.5. Laserul cu sticlă dopată cu Nd

Laserii cu mediu activ solid cei mai importanți sînt laserul cu rubin (primul laser din lume, construit în 1960) și laserii de tip Nd—sticlă și Nd-YAlG. Laserul cu ioni Nd^{3+} în $CaWO_3$ a constituit primul laser cu solid cu funcționare continuă (Johnson și Nassan, 1961). Utilizarea sticlei dopată cu neodim ca mediu laser activ a fost propusă de către Svitzer în anul 1961.

Diagrama nivelelor energetice pentru ionul de Nd^{3+} încorporat în sticlă este prezentată în figura 4.24.

Tranziția laser se produce între subnivelele inferioare ale nivelelor $^4F_{3/2}$ și $^4I_{11/2}$. (Lungimea de undă de aproximativ 1,06 μm este cea mai importantă fiind funcție de compoziția sticlei.) Întrucît la temperatura camerei populația nivelului $^4I_{11/2}$ este neglijabilă, inversia de populație se realizează ușor, sistemul laser fiind tipic cu patru nivele.

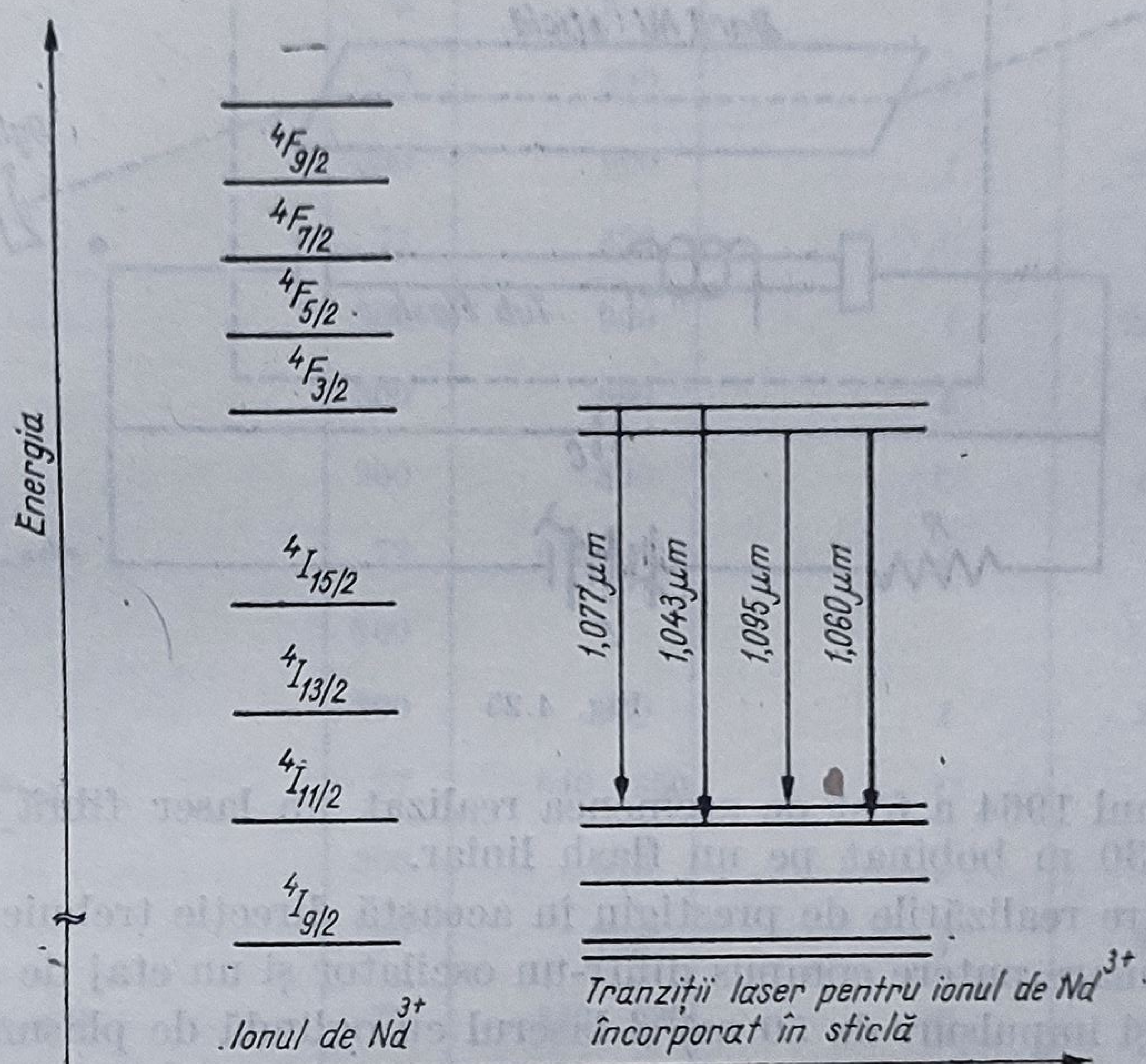


Fig. 4.24

Ionii excitați, ca urmare a absorbției în banda 0,5—0,8 μm, se relaxează cu o eficiență cuantică ridicată pe nivelul cu viață lungă $^4F_{3/2}$ obținîndu-se astfel inversia de populație în raport cu nivelul $^4I_{11/2}$. Utilizarea sticlelor ca „gazde" pentru realizarea mediilor laser active prezintă numeroase avantaje: posibilitatea dopării uniforme cu concentrații variabile pentru dimensiuni mari, preț de cost redus, rezistență mecanică etc.

Un dezavantaj important al sticlelor îl constituie conductivitatea termică scăzută, ceea ce limitează rata de repetiție a impulsurilor și diametrele maxime ale barelor active de Nd-sticlă. Dintre sticlele utilizate (SiBaRb, $Ba(PO_3)_2$, LaBBa, SiPbK, LaAlSi) silicații sînt cei mai indicați spre a fi utilizați ca gazde pentru ionii de Nd^{3+}.

Constructiv, laserul Nd-sticlă ca și alți laseri cu solid este pompat optic astfel că se utilizează diferite sisteme de concentrare a excitației optice furnizate de un tub flash pe bara care constituie mediul activ (figura 4.25). (De exemplu, o cavitate sub forma unui cilindru eliptic avînd în focare bara de sticlă dopată cu Nd^{3+} respectiv tubul flash.) Funcționarea continuă pe lungimea de undă de 1,06 μm a acestui tip de laser a fost observată în anul 1963.

În prezent se realizează bare de Nd-sticlă avînd lungimi pînă la 2 m și diametre de mai mulți cm. În regim relaxat s-au obținut energii de 5000 J cu durate de 3 ms încă din 1967. În regim Q-switch și mode-locking s-au obținut în 1970 puteri de vîrf de $17 \cdot 10^{12}$ W și impulsuri de cîteva picosecunde.

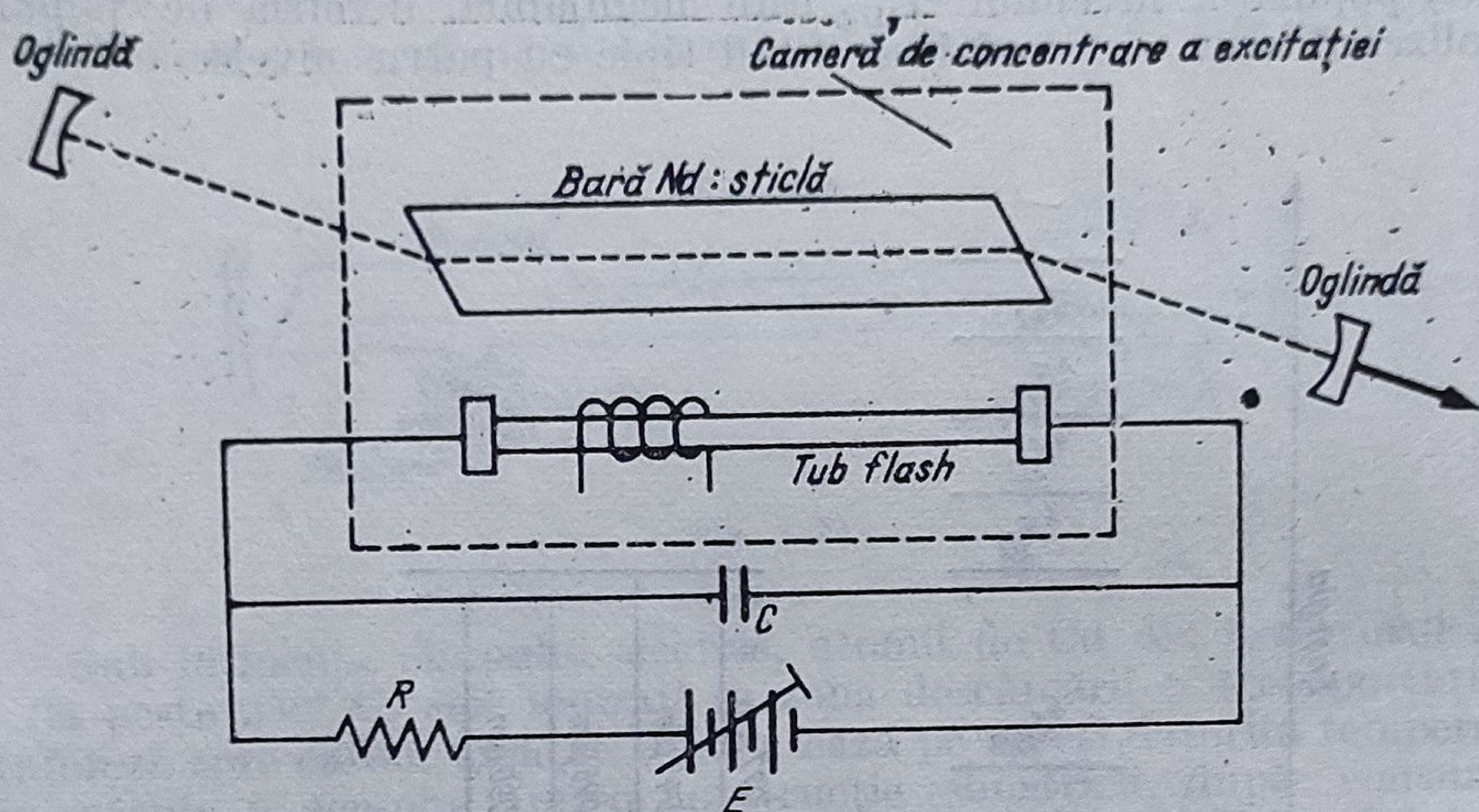


Fig. 4.25

În anul 1964 a fost de asemenea realizat un laser fibră avînd lungimea de 30 m bobinat pe un flash liniar.

Printre realizările de prestigiu în această direcție trebuie menționat laserul de mare putere compus dintr-un oscilator și un etaj de amplificare (100 MW și impulsuri de 50 ns) și laserul cu oglindă de plasmă (în regim mode-locking) realizat în țara noastră în anul 1981 la IFTAR [1—3].

4.6.6. Laserul cu Ga-As

Primul laser cu semiconductori a fost realizat în 1962 într-o joncțiune *p-n* cu Ga-As. Spre deosebire de alte tipuri de laseri (cu gaz sau solid), în cazul laserului cu semiconductori, nivelele energetice implicate în tranzițiile laser nu mai sînt discrete ci fac parte din benzi energetice bine definite ale structurii materialelor semiconductoare, inversia de populație realizîndu-se „prin injecție", după cum s-a arătat în § 4.5.6.

Pentru structurile semiconductoare cu joncțiune *p-n* se utilizează cavități optice rezonante de tip Fabry-Pérot (ca și în cazul celorlalte tipuri de laseri cu mediu activ gazos și solid), realizate tehnologic prin clivajul cristalului după două plane paralele situate la extremitatea zonei active, perpendicular pe joncțiune, care servesc ca reflectori. Alte tipuri de diode laser utilizează ca reflectori pereți mesa crescuți prin epitaxie sau în cazul laserilor integrați, reflectori distribuiți în întreaga structură (Bragg).

Tabelul 4.2

Parametrii funcționali caracteristici ai unor diode laser cu injecție

Nr. crt.	Materialul semiconductor	Temperatura K	Lungimea de undă (nm)	Funcționare: C-continuu, I-impulsuri	Densitate de curent de prag (kA/cm^2)
1	GaAs	2	835	C	0,076
	,,	77	840	C	0,17
3	,,	300	900	I	20
4	,,	77	870	C	0,12
5	,,	300	900	I	20
6	,,	300	900	I	8
7	,,	300	890	C	0,94
8	$Al_xGa_{1-x}As$	77	638—810	I	1—10
9	,,	300			8—50
10	,,	300	880	I	253
11	GaP_xAs_{1-x}	77	640—850	C	1,1
12	,,	300	675	I	250
13	,,	77	725,5	I	1
14	$In_xGa_{1-x}As$	77	880—920	C	0,9—3
15	,,	300	1145	I	70—98
16	InP	77	907	I	2—4
17	$InP_{1-x}As_x$	77	1602	I	6,4—12
18	$Ga_xIn_{1-x}P_{1-y}As_y$	77	1060	I	0,6
19	$GaAs_{1-x}Sb_x$	300	980	I	8,5
20	GaSb	78	1550	I	1—5
21	InAs	2,1	3117	C	4,2
22	InSb	2	5300	C	
23	$InAs_{1-x}Sb_x$	77	3170	I	0,8
24	PbS	77	3960	I	2
25	PbSe	77	6900	I	4—6
26	PbTe	4,2	6500	I	0,5—2
27	$Pb_{1-x}Se_xTe$	77	10600	I	0,78

Deoarece regiunea de cîștig optic ridicat este situată în vecinătatea joncțiunii, radiația laser se va propaga practic în planul joncțiunii (fig. 4.26). Efectul de ghidare al radiației este o consecință a profilului indicelui de refracție al structurii care prezintă salturi pe frontierele zonei active.

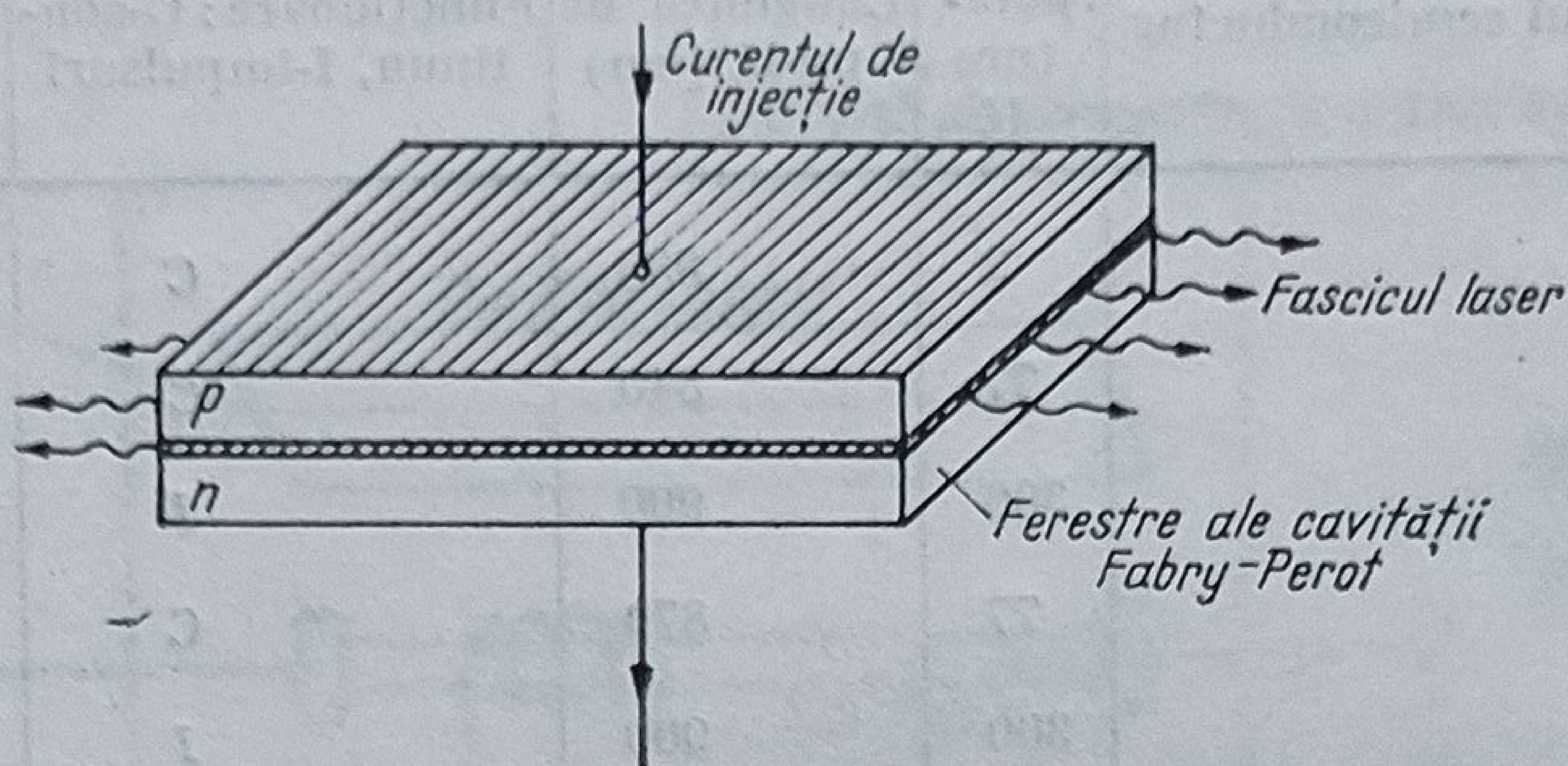


Fig. 4.26

Structurile tipice de diode laser sînt : laserii homojoncțiune, laserii cu heterojoncțiune unilaterală, laserii cu heterojoncțiune bilaterală și laserii cu cavitate optică largă. Spre deosebire de structurile de diode laser homojoncțiune, care sînt realizate cu un singur cristal semiconductor, heterojoncțiunile se obțin prin împreunarea a două cristale semiconductoare cu benzi energetice interzise diferite.

Parametrii fucționali tipici ai unor diode laser sînt prezentați în tabelul 4.2.

Densitățile curentului de prag pentru diferite tipuri de diode laser variază între 0,1 și 10 kA/cm^2 pentru funcționarea continuă și între 1 și 250 kA/cm^2 pentru funcționarea în impulsuri, determinînd dificultăți importante în realizarea acestora, ca urmare a încălzirii lor în timpul funcționării. Diodele laser realizate în prezent lucrează de la temperaturi criogenice pînă la temperatura camerei, furnizînd puteri de zeci de wați în undă continuă și de sute de wați în impuls.

O largă dezvoltare au căpătat-o diodele laser realizate în structuri de tipul nAl_xGe_{1-x} — pGaAs — pAl_xGa_{1-x} As, precum și diodele laser care utilizează alte materiale semiconductoare ; InP ($\lambda = 0{,}907$ μm), GaSb ($\lambda = 1{,}550$ μm), InSb ($\lambda = 5{,}300$ μm), PbS ($\lambda = 3{,}960$ μm) etc.

Spre deosebire de alte tipuri de laseri cu mediu activ solid sau gazos, divergența fasciculului pentru laserii cu semiconductori este mult mai mare (de aproximativ 15° la distanță mare de sursă).

Mai trebuie remarcată, de asemenea, variația puternică a frecvenței liniei emise cu temperatura care poate atinge cîțiva Å/K. Principalele aplicații ale diodelor laser sînt comunicațiile optice, telemetria, prelucrarea informației în circuitele de optică integrată etc.

4.6.7. Laserii cu electroni liberi

Emisia stimulată a radiației de către fascicule relativiste de electroni, aflate în cîmp magnetic transversal, periodic spațial, a fost evidențiată experimental de către J. Madey ș.a. în 1976 [392].

Realizarea pe acest principiu a dispozitivelor *laser cu electroni liberi* este prezentată schematic în fig. 4.27. Radiația care se propagă odată cu fasciculul electronic în regiunea cîmpului magnetic poate fi amplificată

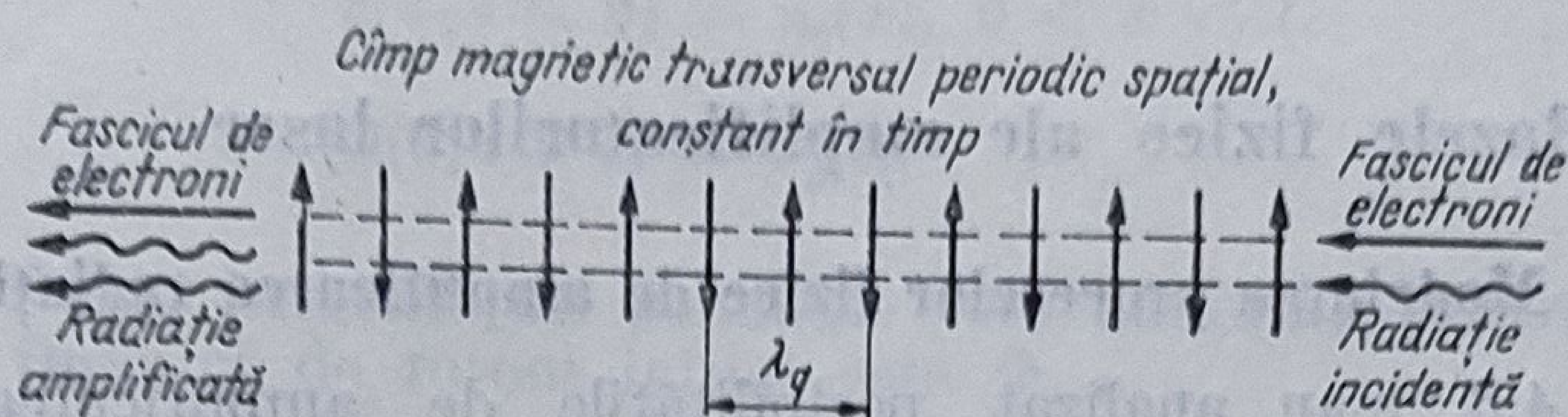


Fig. 4.27

sau absorbită, funcție de relația dintre lungimea de undă a acesteia energia electronilor, perioada spațială și tăria cîmpului magnetic.

Dacă se definește *energia de rezonanță* prin energia care maximizează emisia spontană, se constată că amplificarea radiației se produce pentru energii ale electronilor, avînd valori mai mari decît energia de rezonanță și apropiate de aceasta. Pentru energii ale electronilor avînd valori situate sub energia de rezonanță se produce absorbția radiației.

Dispozitivele de amplificare a radiației cu electroni liberi pot funcționa și ca oscilatoare dacă regiunea de interacție face parte dintr-o cavitate optică rezonantă (fig. 4.82).

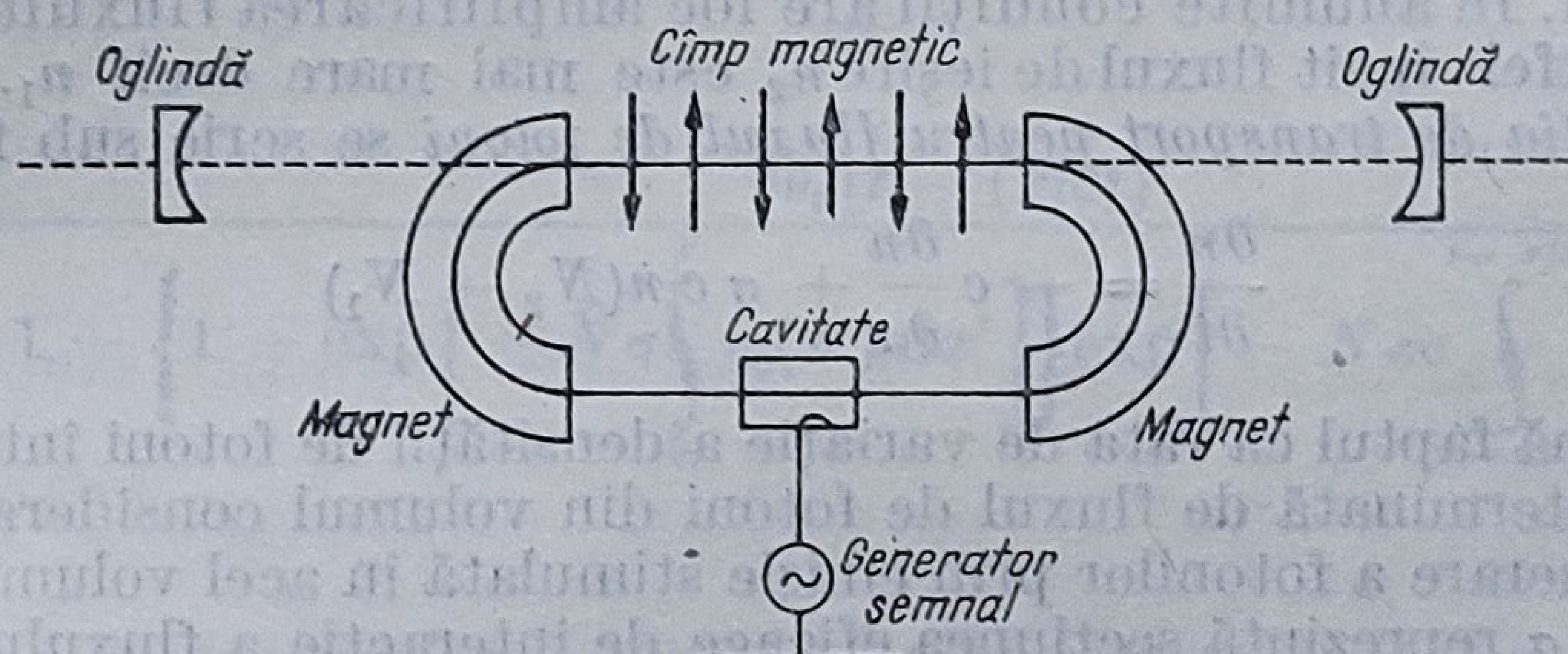


Fig. 4.28

Performanțele laserilor cu electroni liberi sînt determinate de gama largă de lungimi de undă de operare (de la undele milimetrice pînă în ultravioletul îndepărtat), puterile ridicate de ordinul gigawaților, eficiența foarte bună, acordabilitatea acestora. Analiza teoretică riguroasă a interacțiilor specifice laserilor cu electroni liberi este posibilă cu ajutorul formalismelor electrodinamicii cuantice.

În regimul de operare de semnal mic, se poate estima cîștigul pe baza teoriei cuantice în aproximația Weisszäcker-Williams. Conform acestei aproximații, cîmpul magnetic static cu perioada spațială λ_q poate fi simulat cu o undă electromagnetică incidentă avînd lungimea de undă $\lambda_i = (1 + v/c)\lambda_q$, care se propagă în sens invers în raport cu fasciculul de electroni pe care difuzează (difuzie stimulată). Se poate arăta că rezultatele aplicării electrodinamicii clasice concordă cu cele ale analizei cuantice de semnal mic. (Analiza clasică se bazează pe ipoteza că amplitudinea și faza cîmpului în regiunea de interacție pot fi fixate pe baza cunoașterii condițiilor inițiale, ipoteză inconsistentă cu teoria cuantică).

Alte modele cuantice utilizează aproximația de „*cîmp haotic*" conform căreia emisia și absorbția radiației sînt evenimente independente

statistic. Astfel de modele estimează corect numărul mediu de fotoni emiși, fluctuațiile și efectele de saturație. Regimul de semnal mare poate fi analizat pe baza modelului *ecuațiilor Bloch generalizate.*

4.7. Bazele fizice ale amplificatorilor laser

4.7.1. Modelarea proceselor fizice de amplificarea radiației

În § 4.3. s-au analizat posibilitățile de amplificarea radiației, precum și cele de oscilație ale dispozitivelor laser pe baza ecuațiilor cuplate de amplitudine, stabilite în cazul undelor progresive respectiv în cazul cîmpului din cavitățile rezonante.

Un studiu mai complet al proceselor fizice de amplificare a radiației se va face în cele ce urmează, utilizîndu-se ecuația ratelor pentru inversia de populație, ecuația de transport pentru densitatea de fotoni și condițiile la limită corespunzătoare problemelor de tip amplificator.

Fie un mediu atomic cu două nivele avînd densitățile de populații N_1 și N_2 pe nivelele laser implicate ($N_1 + N_2 = N_0$), astfel încît $N = N_2 - N_1$ reprezintă inversia de populație creată prin pompaj. Un flux de fotoni coerent, obținut de la un oscilator laser, avînd densitatea n_1 străbate mediul laser activ considerat mai sus și produce emisia stimulată a radiației. În anumite condiții are loc amplificarea fluxului de fotoni incident astfel încît fluxul de ieșire n_2 este mai mare decît n_1.

Ecuația de transport pentru fluxul de fotoni se scrie sub forma

$$\frac{\partial n}{\partial t} = - c\frac{\partial n}{\partial x} + \sigma c\, n(N_2 - N_1) \qquad (4.189)$$

care exprimă faptul că rata de variație a densității de fotoni într-un volum dat este determinată de fluxul de fotoni din volumul considerat plus rata netă de generare a fotonilor prin emisie stimulată în acel volum. În relația de mai sus σ reprezintă secțiunea eficace de interacție a fluxului de fotoni cu un atom, pentru emisia stimulată, iar c este viteza luminii.

O altă formă a ecuației de transport (4.189) se obține dacă se definește variabila $\Phi = \frac{2n}{V_0}$ care semnifică dublul *densității de fotoni pe atom*

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} = - c\frac{\partial \Phi}{\partial x} + N\sigma\, c\Phi\eta \qquad (4.190)$$

unde prin η s-a definit *inversia de populație relativă* : $\eta = \frac{N_2 - N_1}{N_0}$.

Ținîndu-se seama de dinamica populațiilor N_1și N_2 se obține ecuația ratelor pentru inversia de populație sub forma

$$\frac{\partial}{\partial t}(N_2 - N_1) = - N_0\, \sigma c\Phi\eta \qquad (4.191)$$

Ecuațiile (4.190) și (4.191) trebuie completate cu condițiile la limită corespunzătoare. Întrucît în continuare se va analiza amplificarea impulsurilor de radiație, atît acestea cît și inversia de populație vor fi definite la momentul cînd fasciculul optic intră în amplificator ($t = 0$) și în punctul

$x = 0$, lungimea mediului amplificator fiind L. Prin urmare, se poate scrie

$$\eta(x, t < 0) = \eta_0(x), \; 0 < x < L$$
$$\Phi(0, t > 0) = \Phi_0(t), \tag{4.192}$$

adică distribuția inversiei de populație este uniformă pentru $t < 0$, iar densitatea fluxului de fotoni inițial este Φ_0.

Deși sistemul de ecuații (4.190) și (4.194) este neliniar, rezolvarea sa este posibilă prin metoda separării variabilelor [518]. Se obțin soluțiile

$$\eta(x, t) = \frac{\eta_0(x) \exp\left[-N\sigma \int_0^\infty \eta_0(x')\,dx'\right]}{\exp\left[N\sigma c \int_{-\infty}^{t-x/c} \Phi_0(t')\,dt'\right] + \exp\left[-N\sigma \int_0^x \eta_0(x')\,dx'\right] - 1} \tag{4.193}$$

și

$$\Phi(x, t) = \frac{\Phi_0[t - (x/c)]}{1 - \left\{1 - \exp\left[-N\sigma \int_0^x \eta_0(x')\,dx'\right]\right\} \exp\left[-N\sigma c \int_{-\infty}^{t-x/c} \Phi_c(t')\,dt'\right]} \tag{4.194}$$

care reprezintă inversia de populație relativă respectiv densitatea de fotoni relativă în punctul x la momentul t, după intrarea impulsului de radiație în mediul amplificator.

4.7.2. Amplificarea impulsurilor coerente

Pentru prezentarea particularităților de amplificare a impulsurilor coerente se consideră cazul tipic al unui impuls dreptunghiular, de durată τ_0 și densitate de fotoni n_0

$$\Phi_0(t) = \begin{cases} \dfrac{2n_0}{N_0} = \left(\dfrac{2}{N_0 c}\right) I_0 = \text{const., pentru } 0 < t < \tau_0 \\ 0, \; t < 0, \; t > \tau_0, \end{cases} \tag{4.195}$$

unde $I_0 = n_0 c$ reprezintă intensitatea fasciculului de fotoni, adică numărul de fotoni incident în unitatea de timp, pe unitatea de arie, la momentul $t = 0$.

Intensitatea impulsului la ieșirea din mediul amplificator de lungime L, notată cu $I_L(t) = I[L, t - (x/c)]$, se calculează prin integrarea ecuației (4.194)) ținîndu-se seama de relația (4.195). Se obține expresia generală

$$I(x, t) = \frac{I_0}{1 - [1 - \exp(-\sigma\eta_0 N_0 x)] \exp\{-2\sigma I_0 [t - (x/c)]\}} \tag{4.196}$$

care permite calculul *cîștigului în putere* pe tranzit al amplificatorului G_P

$$G_P = \frac{I(L, t)}{I_0} = \frac{1}{1 - [1 - \exp(-\sigma\eta_0 N_0 L)] \exp\{-2\sigma I_0 [t - (L/c)]\}}. \tag{4.197}$$

Dependența de timp a cîștigului se explică prin depopularea nivelului laser superior de către partea anterioară a impulsului astfel încît pentru restul impulsului mediul prezintă o inversie mai scăzută.

Un alt parametru caracteristic al amplificatorului laser este *cîștigul energetic total* definit astfel

$$G_E = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} I(L, t)\,dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} I(0, t)\,dt}. \tag{4.198}$$

Din calcul rezultă pentru impulsul dreptunghiular expresia

$$G_E = \frac{1}{2\sigma I_0 \tau_0} \ln\{1 + [\exp(2\sigma I_0 \tau_0) - 1] \exp(\sigma\eta_0 N_0 L)\}. \tag{4.199}$$

În figura 4.27 se prezintă calitativ dependența cîștigului în putere G_p funcție de timpul relativ t'/τ_0 care specifică diferite porțiuni ale impulsului, iar în figura 4.28 se prezintă dependența G_p funcție de lungimea relativă pentru diferite porțiuni ale impulsului : (*1*) — frontul anterior ; (*2*) — porțiunea centrală ; (*3*) — frontul posterior.

Dependența cîștigului în putere G_p funcție de numărul total de fotoni în amplificator este prezentată pentru diferite lungimi ale acestuia în figura 4.29. Se constată scăderea cîștigului cu creșterea numărului de fotoni ca urmare a scăderii inversiei de populație, devenind egal cu unitatea pentru valori ridicate ale lui n_{total}, indiferent de lungimea amplificatorului.

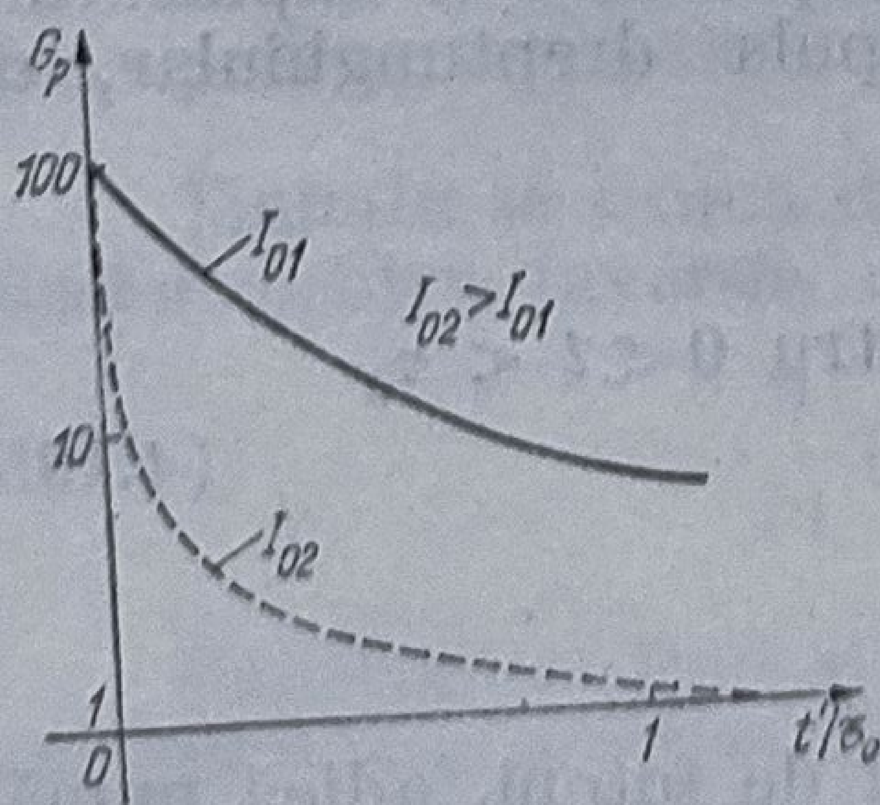


Fig. 4.27

În ceea ce privește expresia (4.199) a cîștigului energetic se constată următoarele :

— pentru impulsuri extrem de scurte $[(2\sigma I_0 \tau_0) \ll 1]$:

$$G_E = \exp(\sigma\eta_0 N_0 L) = \exp\left(\frac{L}{L_e}\right), \tag{4.200}$$

adică se obține o creștere exponențială a cîștigului cu lungimea mediului amplificator ;

— pentru impulsuri de intensitate mare $[\exp(2\tau_0 I_0 \sigma) \gg 1]$:

$$G_E = 1 + \frac{\eta_0 N_0 L}{2 I_0 \tau_0}. \qquad (4.201)$$

adică cîștigul crește liniar cu lungimea mediului amplificator ;

— pentru impulsuri moderate, dar lungimi mari ale mediului amplificator apare o comportare combinată, caracterizată de cîștiguri exponențiale în regiunea inițială și cîștiguri liniare în regiunea finală a amplificatorului.

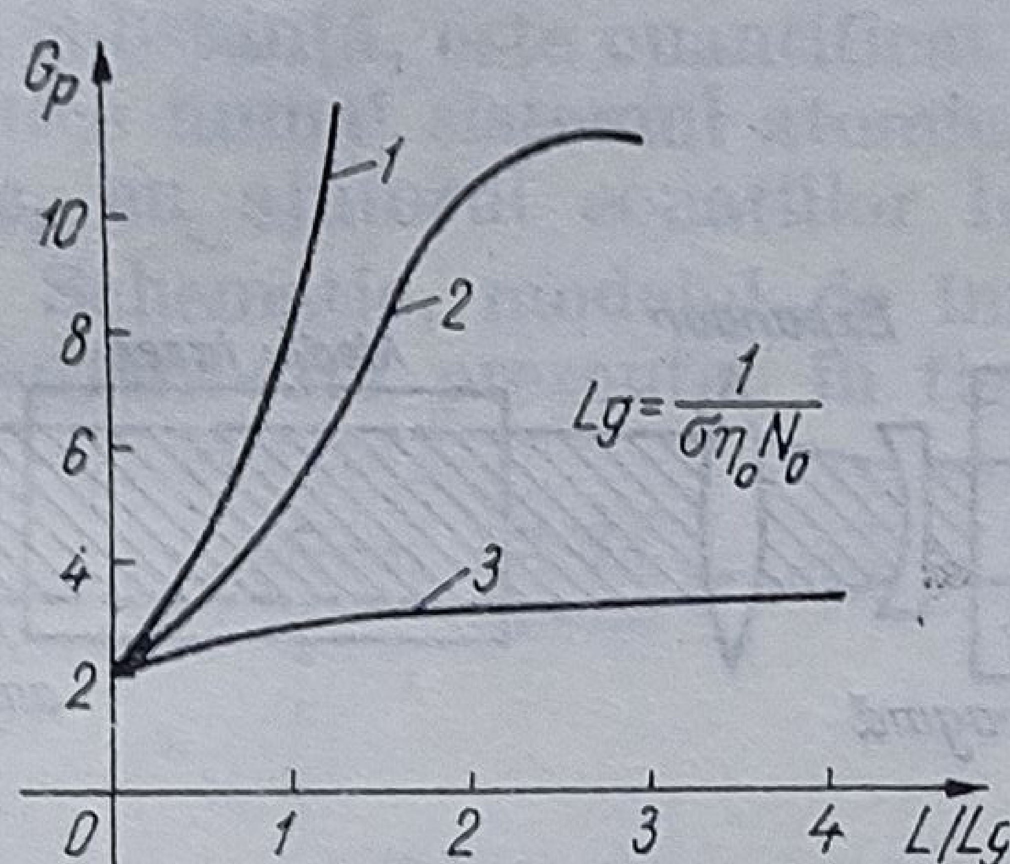


Fig. 4.28

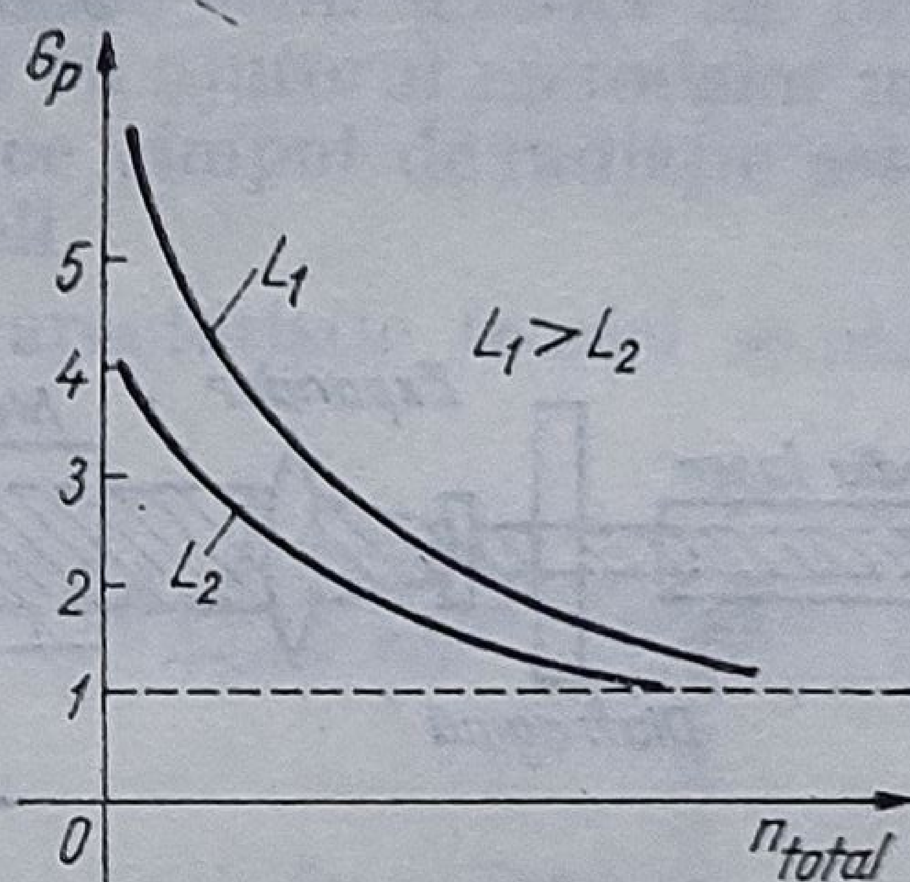


Fig. 4.29

Observație. Alte cazuri care prezintă interes, larg studiate în literatura de specialitate sînt cele ale impuslurilor de tip δ ale lui Dirac sau cele ale impulsurilor lorentziene. În fiecare situație parametrii de control ai amplificării sînt : lungimea mediului amplificator, inversia de populație, intensitatea și durata impulsului etc.

Lărgimea de bandă a amplificatorului se determină din studiul variației secțiunii eficace de absorbție cu frecvența radiației ținîndu-se seama de intensitatea impulsului incident.

4.7.3. Tipuri de amplificatori laser

Schema de principiu a unui amplificator laser este prezentată în fig. 4.30.

În figura 4.31 se prezintă schematic un amplificator laser cu mai multe etaje cu o singură trecere, în figura 4.32 se prezintă un amplificator laser cu mai multe treceri, iar în figura 4.33 un amplificator laser regenerativ (cu reacție pozitivă). Alte sisteme laser amplificatoare sînt cele cu comutarea cîștigului. [228]

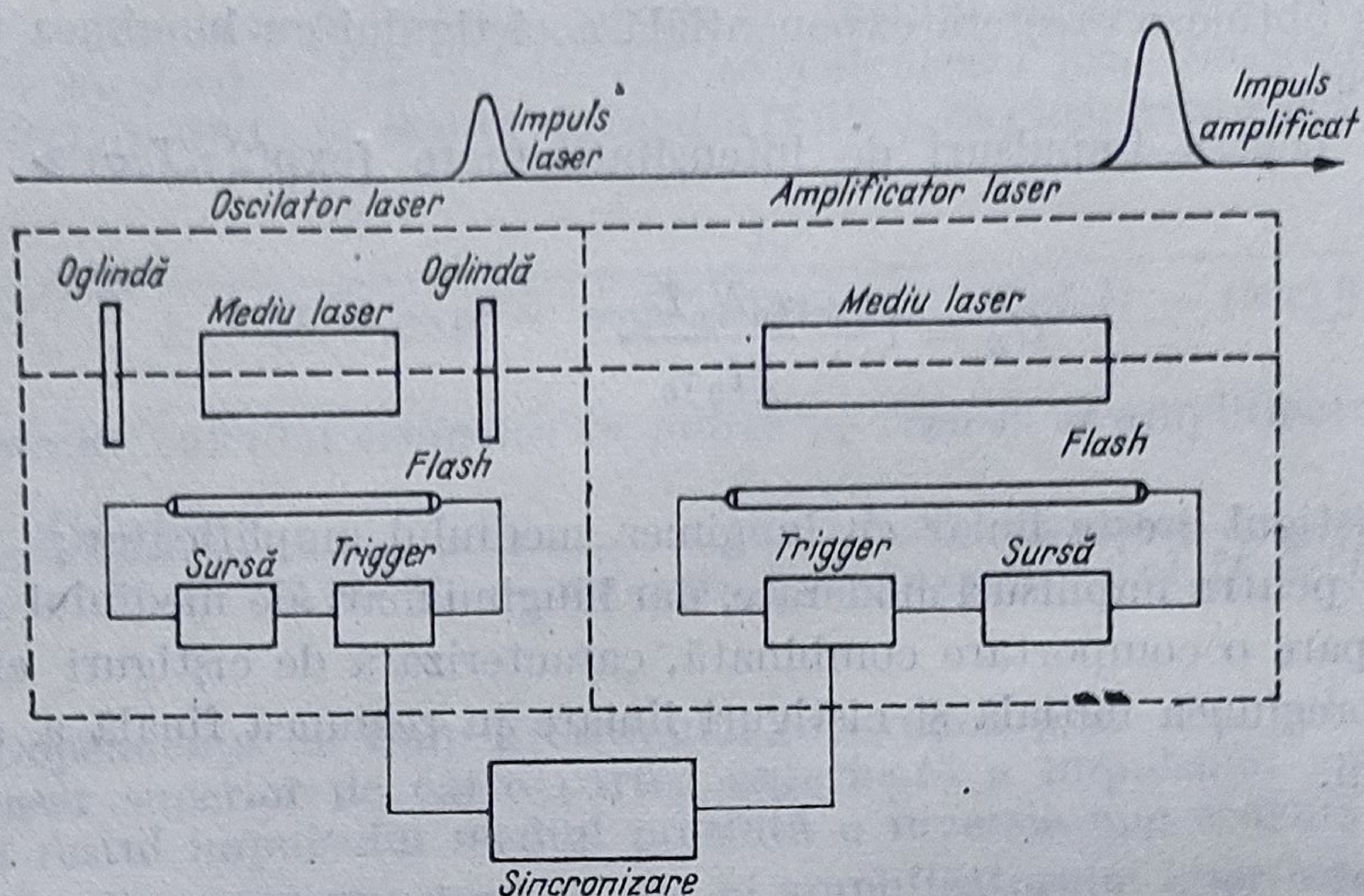


Fig. 4.30

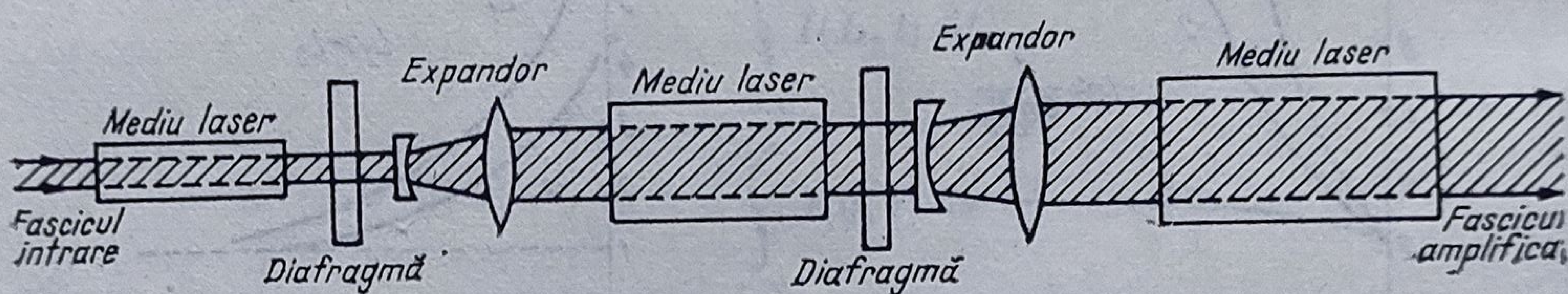


Fig. 4.31

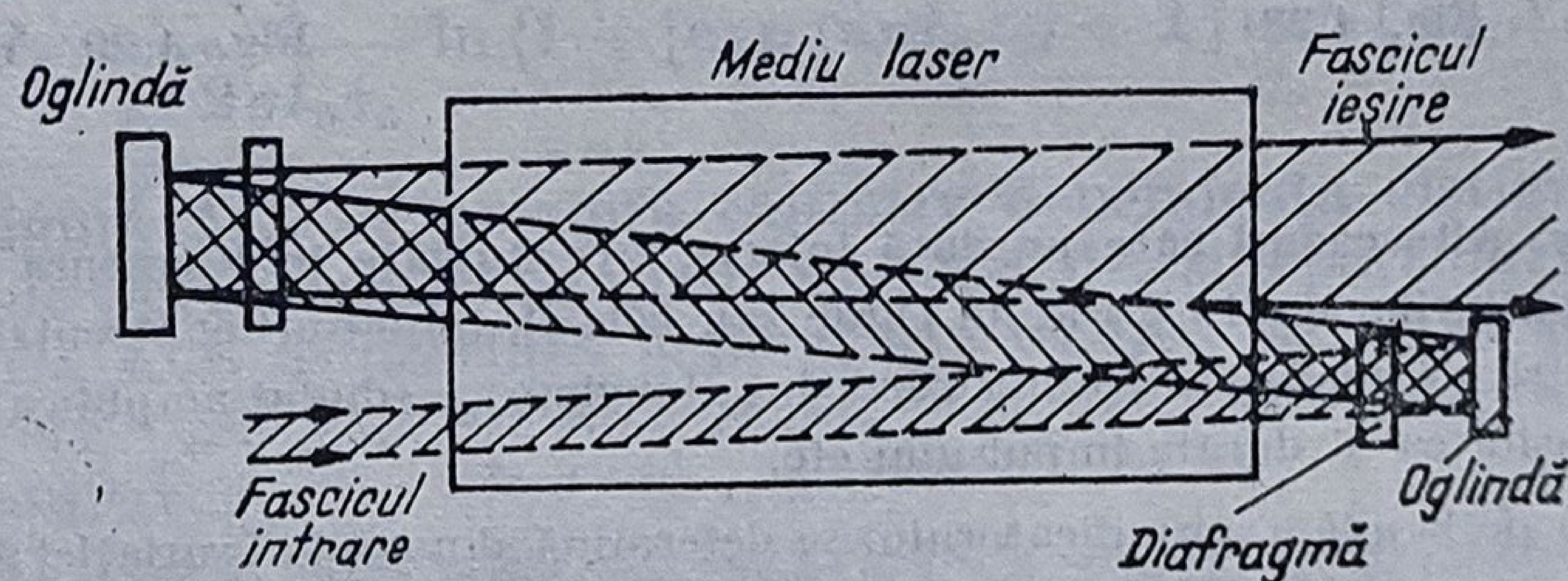


Fig. 4.32

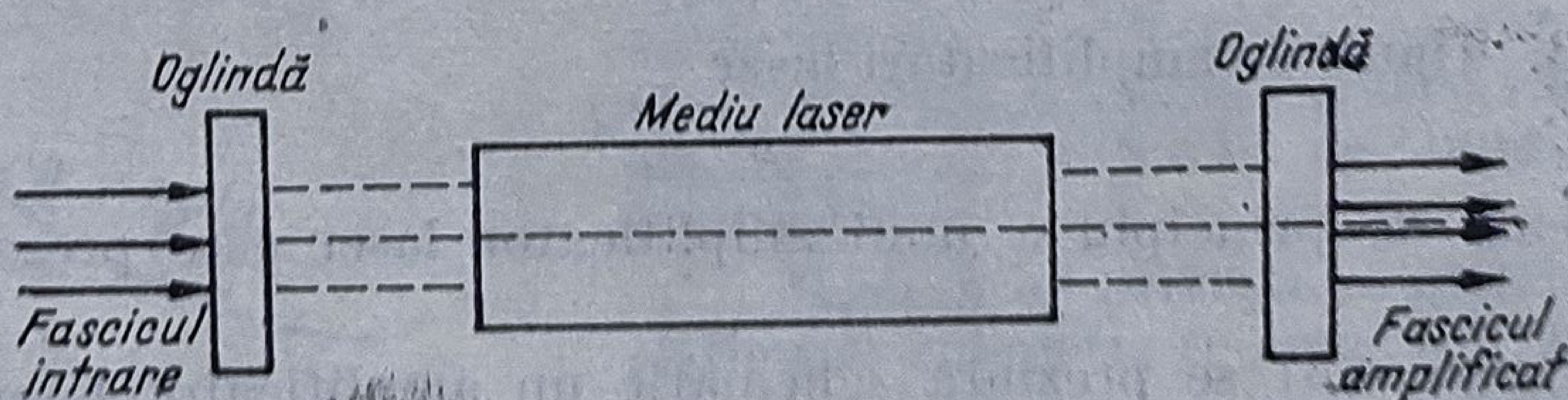


Fig. 4.33

Rezultatele deosebite privind studiul şi realizarea amplificatorilor laser de putere la noi în ţară sînt prezentate în lucrările [1–4].

5. TEORIA SEMICUANTICĂ A LASERILOR

5.1. Introducere

După cum s-a mai menționat, în teoriile semicuantice ale interacției cîmp-substanță, este cuantificat și studiat cu ajutorul metodelor mecanicii cuantice numai sistemul atomic, în timp ce cîmpul de radiație este tratat clasic, cu ajutorul ecuațiilor lui Maxwell.

Schematic, modelul de interacție caracteristic teoriei semicuantice a laserilor este prezentat în figura 5.1.

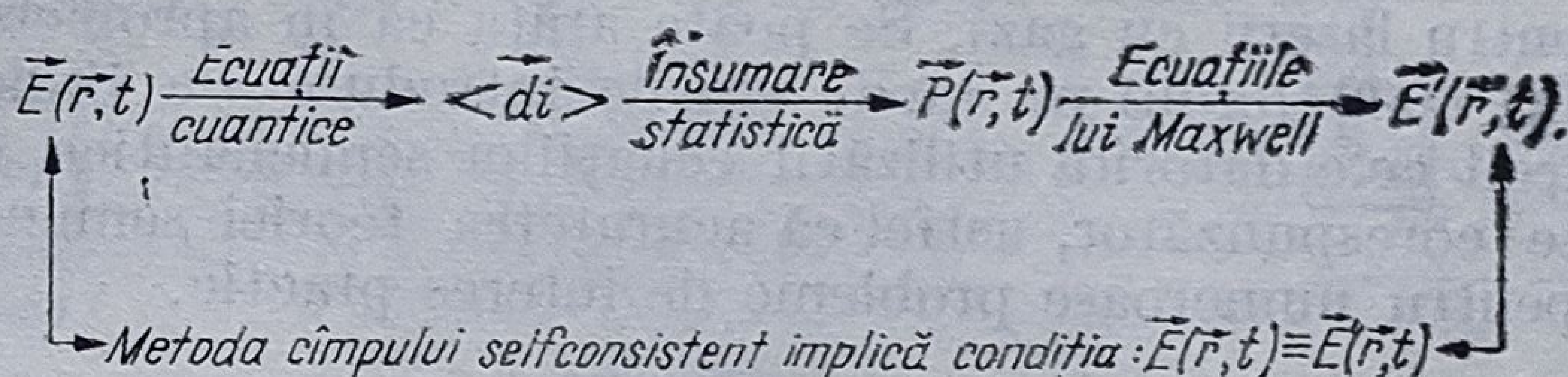


Fig. 5.1

Conform schemei, cîmpul electric **E** din cavitatea rezonantă induce momente de dipol electric microscopice $\mathbf{d}_i$ pentru atomii mediului activ aflați de asemenea în cavitate, conform legilor mecanicii cuantice. În continuare, cu ajutorul formalismului matricei densitate se face o însumare statistică peste momentele de dipol electric microscopice obținîndu-se polarizarea macroscopică $\mathbf{P}(\mathrm{r}, t)$. Polarizarea macroscopică $\mathbf{P}(\mathrm{r}, t)$ acționează ca o sursă în ecuațiile lui Maxwell din care se obține cîmpul electric rezultant $\mathbf{E}(\mathrm{r}, t)$, care din cerințe de selfconsistență trebuie să satisfacă condiția $\mathbf{E}'(\mathrm{r}, t) \equiv \mathbf{E}(\mathrm{r}, t)$.

Această condiție înseamnă că radiația indusă a fiecărui atom se datorește cîmpului mediu produs de toți atomii.

Un astfel de model semicuantic a fost dezvoltat de Lamb [86]. Deși rezultatele teoriei semicuantice sînt remarcabile (tabelul 4.1), o serie de probleme, cum ar fi lărgimea liniei laser, amorsarea oscilației din vid (în absența cîmpului de radiație) și statisticile de fotoni, necesită o tratare complet cuantică a laserilor în care atît sistemul atomic, cît și cîmpul de radiație sînt cuantificate.

Toate aceste probleme sînt corelate cu fenomenele de emisie spontană care joacă în dispozitivele laser rolul unor *surse de zgomot*. Prin urmare,

în teoriile semicuantice zgomotul se neglijează sau, în unele tratări, se introduce artificial, astfel că în absența zgomotului radiația laserului monomod este perfect monocromatică.

Totuși, teoria semicuantică modelează mai complet fenomenele laser în raport cu teoria termodinamică a ratelor chiar atunci cînd ecuațiile ratelor nu sînt stabilite fenomenologic, ci tot cu ajutorul matricei densitate.

Raportul dintre teoriile semicuantică și cuantică poate fi evidențiat mai pregnant, corelat cu proprietățile statistice ale cîmpului de radiație. La studiul coerenței (cap. 2) s-a arătat că proprietățile statistice ale radiației laser diferă esențial de cele ale radiației termice. Astfel statisticile de fotodetecție sînt de tip Bose-Einstein pentru radiația termică și Poisson pentru radiația laser. Această diferență este evidențiată ușor în vecinătatea pragului de oscilație, *tranziția de fază* corespunzătoare pragului însemnînd de fapt tranziția de la intensități relative ale fluctuațiilor ridicate (sub prag) la intensități relative ale fluctuațiilor scăzute (peste prag).

În general, studiul proprietăților statistice ale radiației este dificil datorită atît caracterului neliniar al ecuațiilor în prezența zgomotului, cît și datorită naturii cuantice a zgomotului, deci intervine atît caracterul neliniar, cît și aspectul cuantic al proceselor corespunzătoare.

În numeroase tratări ale laserilor se procedează la liniarizarea ecuațiilor, erorile introduse de aceasta fiind, funcție de regimurile de operare ale laserului (tabelul 5.1), specificate prin numărul de fotoni pe mod (pentru laserii cu gaz). Se poate arăta că în apropierea pragului (aproximativ 4000 fotoni pe mod) erorile introduse de liniarizare sînt mai mici decît cele datorită utilizării ecuațiilor semicuantice, cu surse de zgomot alese corespunzător, astfel că acuratețea teoriei semicuantice este suficientă pentru numeroase probleme de interes practic.

Tabelul 5.1

Numărul de fotoni pe mod	10	10^2-10^3	10^4	10^5-10^{13}	$10^{14}-10^{15}$
Regimul de operare	Mult sub prag	În apropierea pragului	La prag	Mult peste prag	Departe de prag
Posibilități de liniarizare	Liniarizarea posibilă	Tratare neliniară		Tratare evasiliniară	

Eliminarea adiabatică a variabilelor atomice este posibilă în jurul pragului, pentru regimuri de operare între 10^2 și 10^8 fotoni pe mod, ecuația van der Pol fiind, de asemenea, valabilă pe acest interval de lucru.

Din cele prezentate mai sus rezultă că teoria semicuantică implică neglijarea *caracterului de operator* al cîmpurilor de radiație în scrierea ecuațiilor de interacție.

Trebuie avut în vedere și faptul că sistemul laser reprezintă un sistem termodinamic deschis, departe de echilibrul termic.

5.2. Ecuațiile semicuantice pentru un mediu atomic cu două nivele cu lărgire omogenă

5.2.1. Modelul semicuantic al laserului

Modelul general de analiză al unui laser cu două nivele conform teoriei semicuantice este prezentat schematic în fig. 5.2.

După cm rezultă din figură, fiecare atom activ este cuplat cu propriile sale rezervoare *de cîștig* și *de pierderi*, interacția dintre atomi realizîndu-se numai prin intermediul cîmpului de radiație (densitatea atomilor activi fiind scăzută). Rezervoarele de cîștig sînt determinate de mecanismele *de pompaj* pe cînd cele de pierderi sînt determinate de procesele *de amortizare* (tranziții neradiative etc.).

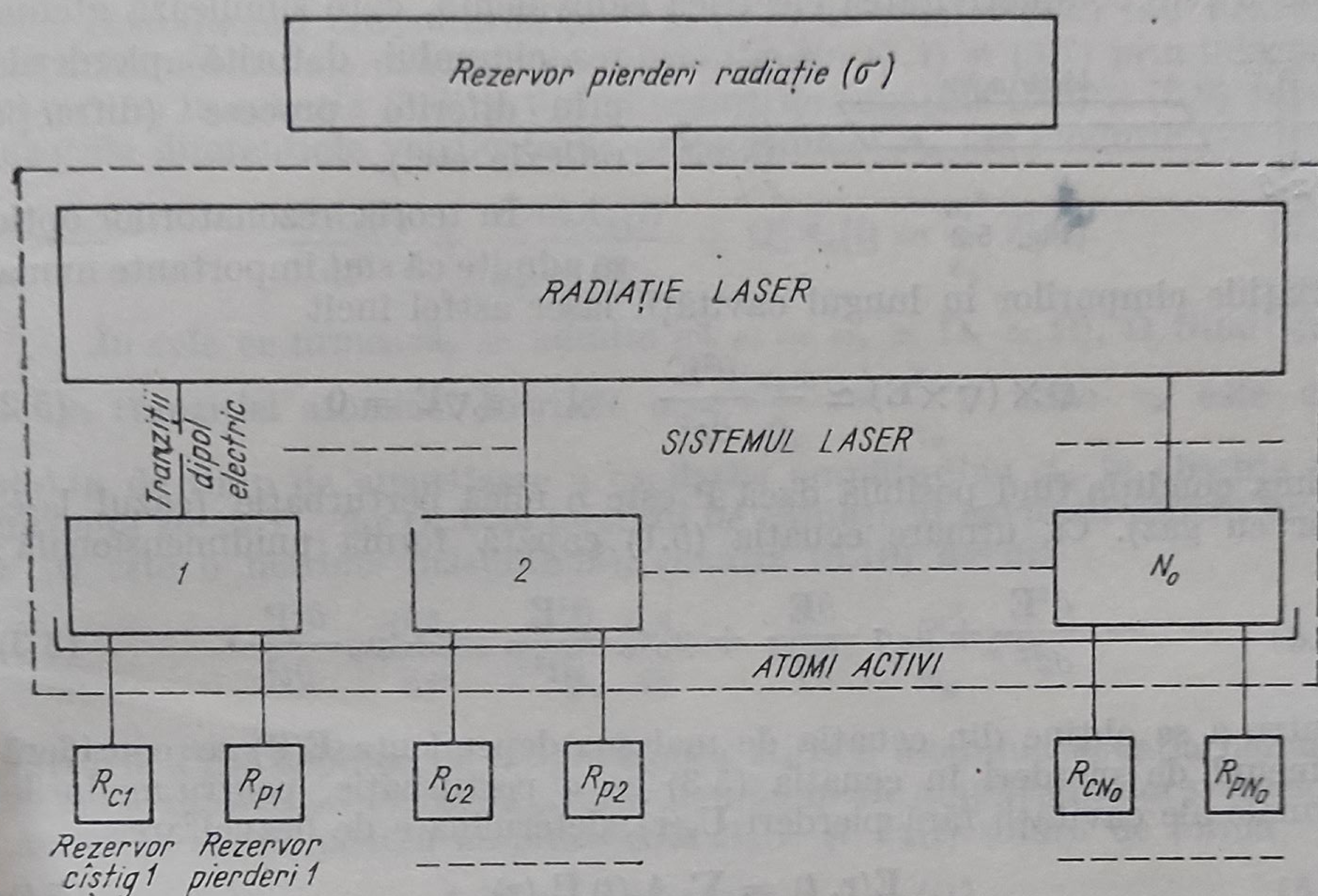


Fig. 5.2.

Rezervorul de pierderi pentru radiație ia în considerare toate sursele de pierderi de acessteia (transmisie, difracție, împrăștiere etc.).

Principalele ipoteze utilizate în elaborarea modelului semicuantic sînt următoarele:

— se presupune că mediul atomic activ are numai două stări energetice (fig. 1.6) ca urmare a faptului că frecvența radiației modului laser este apropiată de frecvența tranziției (pentru mediile atomice cu mai multe nivele implicate în pompaj și în pierderi, cîmpul laser este presupus cuplat numai cu nivelele a și b);

— se lucrează în aproximația de dipol electric, fapt justificat de lungimea de undă optică mult mai mare decît dimensiunile atomice;

— se folosește *aproximația undei rotitoare*, adică în expresiile de tipul (1.4) se neglijează termenul antirezonant în comparație cu cel rezonant, întrucît frecvența de oscilație a modului ω_n este apropriată de frecvența tranziției Ω ($\Omega - \omega_n \lesssim \gamma$ pe cînd $\Omega + \omega_n \gg \gamma$).

5.2.2. Ecuațiile pentru amplitudinile și frecvențele modurilor de oscilație

Din ecuațiile lui Maxwall care descriu cîmpul electromagnetic din cavitatea laser (fig. 5.3) rezultă că polarizarea macroscopică a mediului

11 – c. 765

După cm rezultă din figură, fiecare atom activ este cuplat cu propriile sale rezervoare *de cîștig* și *de pierderi*, interacția dintre atomi realizîndu-se numai prin intermediul cîmpului de radiație (densitatea atomilor activi fiind scăzută). Rezervoarele de cîștig sînt determinate de mecanismele *de pompaj* pe cînd cele de pierderi sînt determinate de procesele *de amortizare* (tranziții neradiative etc.).

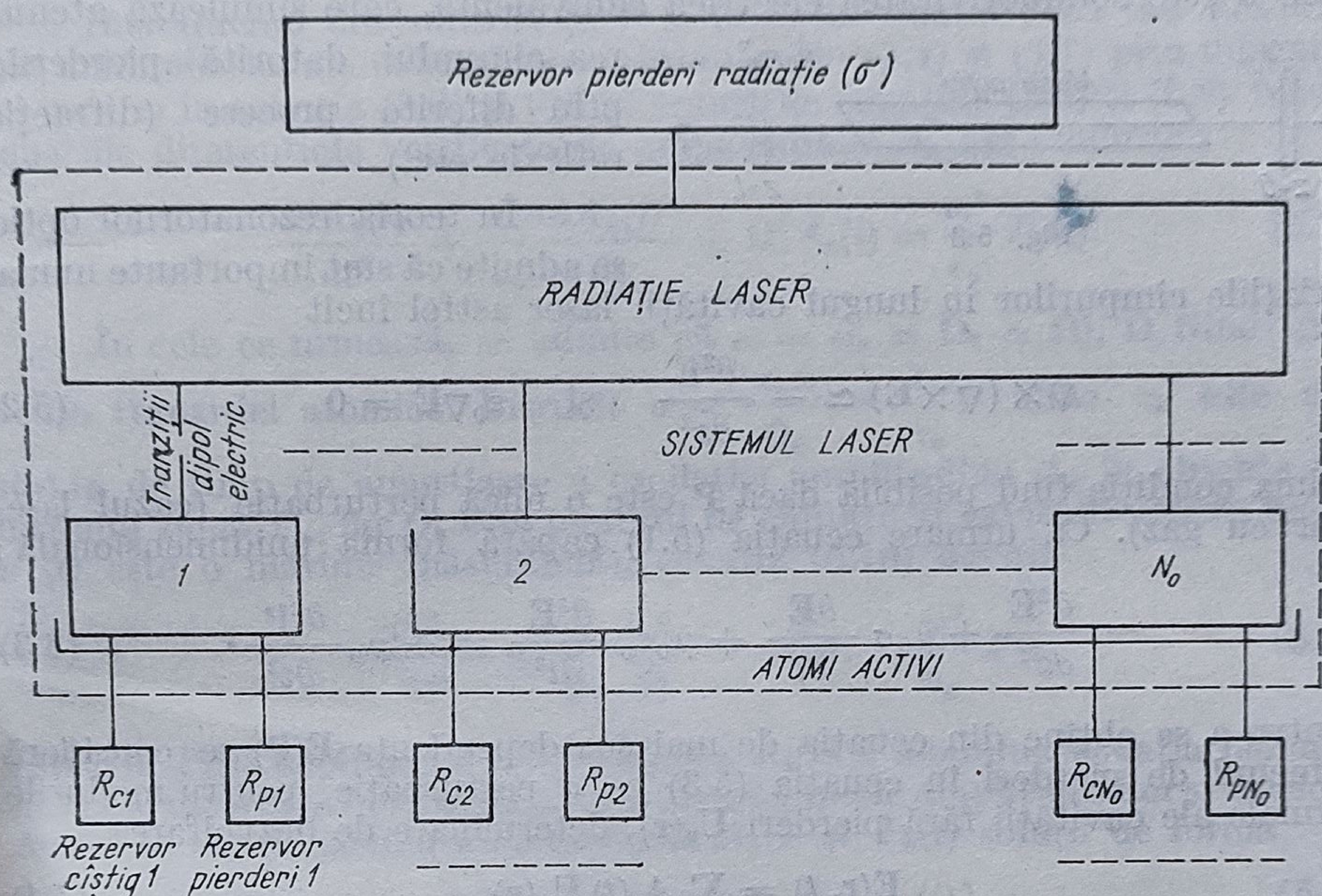


Fig. 5.2.

Rezervorul de pierderi pentru radiație ia în considerare toate sursele de pierderi de acesteia (transmisie, difracție, împrăștiere etc.).

Principalele ipoteze utilizate în elaborarea modelului semicuantic sînt următoarele:

— se presupune că mediul atomic activ are numai două stări energetice (fig. 1.6) ca urmare a faptului că frecvența radiației modului laser este apropiată de frecvența tranziției (pentru mediile atomice cu mai multe nivele implicate în pompaj și în pierderi, cîmpul laser este presupus cuplat numai cu nivelele a și b);

— se lucrează în aproximația de dipol electric, fapt justificat de lungimea de undă optică mult mai mare decît dimensiunile atomice;

— se folosește *aproximația undei rotitoare*, adică în expresiile de tipul (1.4) se neglijează termenul antirezonant în comparație cu cel rezonant, întrucît frecvența de oscilație a modului ω_n este apropiată de frecvența tranziției Ω ($\Omega - \omega_n \lesssim \gamma$ pe cînd $\Omega + \omega_n \gg \gamma$).

5.2.2. Ecuațiile pentru amplitudinile și frecvențele modurilor de oscilație

Din ecuațiile lui Maxwall care descriu cîmpul electromagnetic din cavitatea laser (fig. 5.3) rezultă că polarizarea macroscopică a mediului

11 – c. 765

activ $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ este corelată cu cîmpul electric din cavitate $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ prin ecuația de propagare

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \mu_0 \sigma \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \tag{5.1}$$

unde σ este conductivitatea electrică echivalentă, care simulează atenuarea cîmpului datorită pierderilor prin diferite procese (difracție, reflexie etc.).

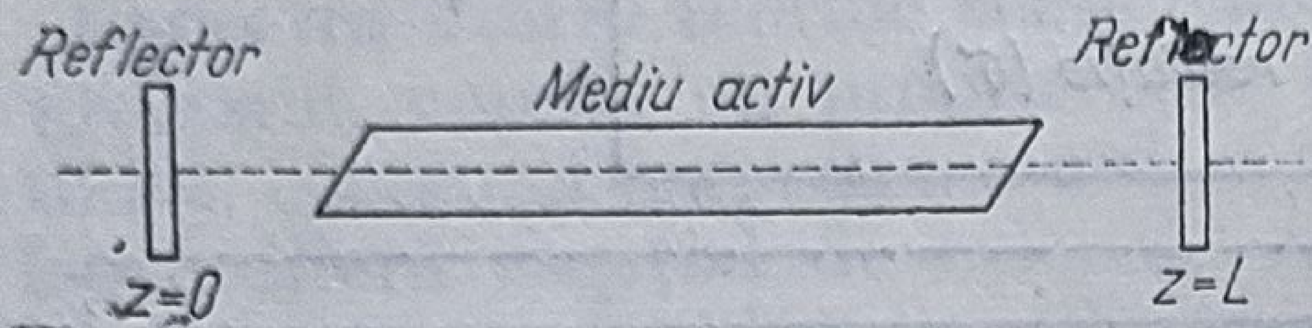


Fig. 5.3

În teoria rezonatorilor optici se admite că sînt importante numai variațiile cîmpurilor în lungul cavității laser astfel încît

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) \simeq -\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial z^2} \quad \text{și} \quad \varepsilon_0 \nabla \mathbf{E} = 0 \tag{5.2}$$

ultima condiție find posibilă dacă $\mathbf{P}$ este o mică perturbație (cazul laserilor cu gaz). Ca urmare ecuația (5.1) capătă forma unidimensională:

$$-\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial z^2} + \mu_0 \sigma \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}. \tag{5.3}$$

Pentru a se obține din ecuația de mai sus dependența $\mathbf{E}(\mathbf{P})$ se consideră termenul de pierderi în ecuația (5.3) ca o perturbație, pentru modurile normale ale cavității fără pierderi $\mathbf{U}_n(\mathbf{r})$, determinate de dezvoltarea

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_n A_n(t)\, \mathbf{U}_n(\mathbf{r}) \tag{5.4}$$

unde $\mathbf{U}_n(\mathbf{r})$ verifică ecuația

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{U}_n(\mathbf{r})) - \mu_0 \varepsilon_0 \Omega_n^2 \mathbf{U}_n(\mathbf{r}) = 0 \tag{5.5}$$

și condițiile la limită ale cavității.

În ecuația de mai sus Ω_n este frecvența proprie a modurilor cavității, vectorul de undă corespunzător fiind $|\mathbf{K}_n| = \frac{\Omega_n}{c} = \frac{n\pi}{L}$, astfel că

$$U_n(z) = \sqrt{\frac{2}{L}} \sin K_n z = \sqrt{\frac{2}{L}} \sin \frac{n\pi z}{L} \quad (n = 1, 2, \ldots). \tag{5.6}$$

Pentru a se separa partea spațială de partea temporală și în expresia polarizării se consideră dezvoltarea

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \sum_n P_n(t)\, \mathbf{U}_n(\mathbf{r}) \tag{5.7}$$

unde componentele Fourier ale polarizării sînt date de expresia

$$P_n(t) = \frac{\int \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)\, \mathbf{U}_n(\mathbf{r})\, \mathrm{d}^3\mathbf{r}}{\int |\mathbf{U}_n(\mathbf{r})|\, \mathrm{d}^3\mathbf{r}}, \tag{5.8}$$

adică P_n este determinat de proiecţia termenului sursă $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ pe modul n. Întrucît cîmpul laser este practic monocromatic se poate scrie

$$\frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} = -\omega^2 \mathbf{P} \tag{5.9}$$

unde frecvenţa de oscilaţie a polarizării ω va fi identificată cu accea a cîmpului laser ω_n.

Introducînd dezvoltările (5.4) şi (5.7) în ecuaţia (5.1) sau dezvoltările unidimensionale echivalente (obţinute din (5.4) şi (5.7) prin înlocuirea lui $\mathbf{r}$ cu z) în ecuaţia (5.3) şi ţinînd seama de ecuaţiile (5.5) şi (5.9) rezultă ecuaţiile diferenţiale verificate de amplitudinile A_n ale modurilor

$$\frac{d^2 A_n(t)}{dt^2} + \frac{\sigma}{\varepsilon_0}\frac{dA_n(t)}{dt} + \Omega_n^2 A_n(t) = \frac{\omega^2}{\varepsilon_0} P_n(t). \tag{5.10}$$

În cele ce urmează, se admite că $\omega = \omega_n \simeq \Omega_n \simeq \Omega$), Ω fiind frecvenţa tranziţiei atomice. Întrucît $\sigma = \dfrac{\varepsilon_0 \omega}{Q_n} = \dfrac{\varepsilon_0}{\tau_n}$, unde τ_n este constanta de timp de amortizare a oscilaţiei amplitudinii A_n în absenţa termenului sursă P_n, iar Q_n este factorul de calitate al cavităţii pentru modul n (Q este o mărime măsurabilă), ecuaţia (5.10) devine

$$\frac{d^2 A_n}{dt^2} + \frac{\omega}{Q_n}\frac{dA_n}{dt} + \Omega_n^2 A_n = \frac{\omega^2}{\varepsilon_0} P_n, \tag{5.11}$$

Întrucît $P_n(t)$ depinde de amplitudinea $A_n(t)$ a modului, ecuaţia neliniară (5.11) se rezolvă prin metoda ,,variaţiilor lente ale amplitudinilor şi fazelor". Astfel se admit pentru amplitudinile $A_n(t)$ şi $P_n(t)$ soluţii de forma

$$A_n(t) = E_n(t) \cos[\omega_n t + \varphi_n(t)] \tag{5.12}$$

$$P_n(t) = C_n(t) \cos[\omega_n t + \varphi_n(t)] + S_n(t) \sin[\omega_n t + \varphi_n(t)] \tag{5.13}$$

unde ω_n este frecvenţa de oscilaţie a modului n, iar $E_n(t)$, $C_n(t)$ şi $S_n(t)$ sînt funcţii cu variaţie lentă în raport cu $\cos \omega_n t$ şi $\sin \omega_n t$.

Cei doi termeni, cu amplitudinile $C_n(t)$ (în fază) şi $S_n(t)$ (în cuadratură) din expresia polarizării, se datoresc defazajului acestei mărimi în raport cu cîmpul electric $A_n(t)$. Se înlocuiesc, în cele ce urmează, expresiile (5.12) şi (5.13) în ecuaţia (5.11), se reţin numai derivatele de ordinul întîi ale lui $E_n(t)$ şi $\varphi_n(t)$ şi se egalează coeficienţii termenilor rapid variabili în sinus şi cosinus cu zero, separat. În continuare, neglijînd termenii care conţin pe $\omega_n E_n/Q_n$, $\dot{\varphi}_n \dot{E}_n$ şi $\omega_n \dot{\varphi}_n \dot{E}_n/Q_n$ (Q a fost presupus mare) şi admiţînd că $(\omega_n + \dot{\varphi}_n)$ este foarte apropiat de Ω_n se obţin ***ecuaţiile selfconsistente ale amplitudinilor şi frecvenţeor*** ale lui Lamb

$$(\omega_n + \dot{\varphi}_n(t) - \Omega_n) E_n = -\frac{\omega}{2\varepsilon_0} C_n(t) \tag{5.14}$$

$$\dot{E}_n + \frac{\omega}{2Q_n} E_n = -\frac{\omega}{2\varepsilon_0} S_n(t). \tag{5.15}$$

Ecuaţiile (5.14) şi (5.15) pot fi utilizate pentru determinarea mărimilor E_n şi ω_n atunci cînd P_n este cunoscut.

(*Observație.* În cazul particular al absenței polarizației $C_n(t) = S_n(t) = 0$ din ecuațiile (5.14) și (5.15) rezultă, printr-o alegere corespunzătoare a fazei relațiile

$$\omega_n = \Omega_n \tag{5.16}$$

$$E_n = E_{n0} \exp\left(-\frac{\Omega_n t}{2Q_n}\right) = E_{n0} \exp\left(-\frac{1}{\tau_n}\right) \tag{5.17}$$

în concordanță cu definiția factorului de calitate Q_n).

Se poate arăta că în *aproximația liniară* din ecuațiile (5.14) și (5.15) rezultă numai frecvența de oscilație și condiția de prag, determinarea amplitudinilor implicînd și considerarea termenilor neliniari. Într-adevăr în aproximația liniară

$$P_n = \varepsilon_0 \mathrm{Re}\,\{(\chi_n' + i\chi_n'')E_n \exp[-i(\omega_n t + \varphi_n)]\} \tag{5.18}$$

astfel incît

$$C_n = \varepsilon_0 \chi_n' E_n \quad \text{și} \quad S_n = \varepsilon_0 \chi_n'' E_n. \tag{5.19}$$

Ținîndu-se seama de (5.19), ecuațiile (5.14) și (5.15) capătă forma

$$\omega_n + \dot{\varphi}_n = -\frac{\omega_n}{2}\chi' \tag{5.20}$$

respectiv

$$\dot{E}_n + \frac{\Omega_n}{2Q_n} E_n = -\frac{\omega_n}{2}\chi_n'' E_n, \tag{5.21}$$

Din ecuația (5.20), printr-o alegere corespunzătoare a fazei se obține frecvența de oscilație a modului

$$\omega_n = \frac{\Omega_n}{1 + (\chi_n'/2)}, \tag{5.22}$$

Faptul că $\omega_n \neq \Omega_n$ evidențiază efectul „de tîrîre" a frecvenței (mode-pulling) datorat cuplării celor doi oscilatori cu frecvențe diferite: cavitatea și sistemul atomic.

Din ecuația (5.22) rezultă amplitudinea:

$$E_n(t) = E_{n0} \exp\left[-\frac{\omega_n}{2}\left(\frac{1}{Q_n} + \chi''\right)t\right] \tag{5.23}$$

care evidențiază *condiția de prag*

$$-\chi_n''/\chi_{nc}'' = 1/Q_n \tag{5.24}$$

astfel încît peste prag amplitudinea oscilației laser crește exponențial în timp. (S-a notat cu χ_{nc}'' valoarea critică „de prag" a mărimii χ_n''). Peste prag $\chi'' \ll 0$, absorbția negativă corespunzînd inversiei de populație. Limitarea reală a amplitudinii de oscilație se datorește efectelor neliniare de saturație care intervin peste prag, determinînd o scădere a inversiei de populație.

Prin urmare, aproximația liniară pentru tratarea laserilor nu este suficientă, fiind necesară luarea în considerare a efectelor neliniare.

(Ținîndu-se seama de relația $I \sim E^2$, ecuația (5.20) se scrie sub forma $\dot{I} = -(\omega_n/2Q)I - \omega\chi''I$, care arată că rata de modificare a intensității este determinată de bilanțul dintre cîștigul cavității și pierderi, din condiția de regim staționar $\dot{I} = 0$ rezultînd și pe această cale condiția de prag. Totodată se observă că indicele de refracție $n(\omega_n) \simeq 1 + \chi_n'/2$).

5.2.3. Ecuațiile pentru polarizarea mediului

Ecuațiile semicuantice se referă atît la ecuațiile de cîmp cît și la ecuațiile pentru polarizarea mediului. Ecuațiile pentru polarizarea mediului

sînt de tip Bloch şi rezultă din ecuaţia Schrödinger prin considerarea unor termeni corespunzător aleşi pentru amortizare şi pompaj.

În § 1.9 s-a arătat că sistemul atomic cu două nivele prezentat în fig. 1.6 este descris de ecuaţia de mişcare a operatorului densitate

$$i\frac{d\hat{\rho}}{dt}=[\hat{H},\hat{\rho}] \tag{5.25}$$

unde $\hat{H}$ se poate scrie sub formele echivalente

$$\hat{H}=\hat{H}_A+\hat{W}=\hat{H}_A+h\hat{V}=\hat{H}_A-e\hat{x}E(\mathbf{r},t) \tag{5.26}$$

$\hat{H}_A$ fiind hamiltonianul atomic, iar $\hat{W}$ hamiltonianul de interacţie. Totodată s-a arătat că vectorul pseudospin **r** asociat sistemului atomic cu două nivele, satisface ecuaţia (1.172).

În § 1.10 s-a stabilit, de asemenea, că operatorul densitate pentru sistemul atomic cuplat cu rezervorul de pierderi în aproximaţia Wigner-Weisskopf este determinat de ecuaţia de mişcare

$$\frac{\partial\hat{\rho}(\mathbf{r},t)}{\partial t}=-i[\hat{H}_A-\hat{\mathbf{d}}\mathbf{E},\ \hat{\rho}]-\frac{1}{2}[\hat{\Gamma}\hat{\rho}+\hat{\rho}\hat{\Gamma}] \tag{5.27}$$

unde matricea de amortizare Γ este dată de relaţia (1.179). Ecuaţia (5.27) se scrie compact sub forma

$$i\frac{d\hat{\rho}}{dt}=[\hat{H},\hat{\rho}]-\frac{i}{2}[\hat{\Gamma},\hat{\rho}]_A \tag{5.27'}$$

unde indicele (A) semnifică anticomutatorul mărimilor din paranteză. (Trebuie observat că în concordanţă cu problemele care prezintă interes, aproximaţia Wigner-Weisskopf nu este valabilă pentru intervale de timp foarte scurte sau foarte lungi întrucît ar rezulta valori proprii complexe pentru hamiltonian care este operator hermitic.)

Fie un atom aflat la momentul t_0 în punctul $\mathbf{r}_0$ avînd viteza **v**. Dacă se neglijează pentru început ciocnirile, la momentul t atomul va fi în punctul $\mathbf{r}=\mathbf{r}_0+\mathbf{v}(t-t_0)$.

Dacă la momentul t_0 atomul se află în starea $|a\rangle$ soluţia ecuaţiei de mişcare (5.27) pentru operatorul densitate are forma

$$\rho(a,\ \mathbf{r},\ t,\ \mathbf{v},\ t)=\begin{bmatrix}|a|^2 & ab^* \\ a^*b & |b|^2\end{bmatrix} \tag{5.28}$$

şi satisface condiţia iniţială

$$\rho(a,\ \mathbf{r}_0,\ t_0,\ \mathbf{v},\ t_0)=\rho(a)=\begin{bmatrix}1 & 0 \\ 0 & 1\end{bmatrix}. \tag{5.29}$$

(Se ştie că mărimile $|a|^2$ şi $|b|^2$ sînt corelate cu probabilităţile de ocupare a stărilor $|a\rangle$ şi $|b\rangle$ pe cînd mărimile a^*b şi b^*a sînt implicate în calculul polarizării.)

Fie $\lambda(\mathbf{r}_0,t_0,\mathbf{v})$ densitatea ratei medii de pompaj, adică numărul de atomi excitaţi în stările $\alpha=a,\ b$, în unitatea de timp, pe unitatea de volum.

Conform fig. 5.1 pentru a se obţine polarizarea macroscopică $\mathbf{P}(\mathbf{r},t)$ trebuie să se realizeze însumarea statistică peste momentele de dipol microscopice ale atomilor activi.

Prin urmare, dacă se ține seama de contribuțiile atomilor care sosesc în punctul $\mathbf{r}$ la momentul t, indiferent cînd aceștia au fost excitați în stările $|a\rangle$ sau $|b\rangle$ se poate scrie

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = d \sum_{\alpha=a,\, b} \int_{-\infty}^{t} \mathrm{d}t_0 \int \mathrm{d}\mathbf{r}_0 \int \mathrm{d}\mathbf{v}\, \lambda_\alpha(\mathbf{r}_0, t_0, \mathbf{v}) \times$$
$$\times [\rho_{ab}(\alpha, \mathbf{r}_0, t_0, \mathbf{v}, t) + \rho_{ba}(\alpha, \mathbf{r}_0, t_0, \mathbf{v}, t)] \times$$
$$\times\, \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0 - \mathbf{v}(t - t_0)) \tag{5.30}$$

unde $\mathbf{d} = \langle \psi_a | e\, \mathbf{r} | \psi_b \rangle$ este elementul de matrice pentru momentul de dipol electric al tranziției între stările $|a\rangle$ și $|b\rangle$.

În aproximația amplitudinilor lent variabile $\lambda_\alpha(\mathbf{r}_0, t_0, \mathbf{v})$ poate fi înlocuit cu $\lambda_\alpha(\mathbf{r}, t_0, \mathbf{v})$, astfel că prin integrare peste $\mathbf{r}_0$ expresia (5.30) se scrie astfel:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = d \sum_{\alpha=a,\, b} \int_{-\infty}^{t} \mathrm{d}t_0 \int \mathrm{d}\mathbf{v}\, \lambda_\alpha(\mathbf{r}, t, \mathbf{v}) \times$$
$$\times [\rho_{ab}(\alpha, \mathbf{r} - \mathbf{v}(t - t_0), t_0, \mathbf{v}, t) + \mathrm{cc}]. \tag{5.31}$$

O altă modalitate echivalentă de obținere a polarizării macroscopice $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ constă în calculul expresiei

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \sum_{t_{0i}^{i} < t} \mathrm{Urm}\, [\hat{\rho}(a, t_{0i}, t), \hat{p}] \tag{5.32}$$

unde suma se face peste toți atomii activi din unitatea de volum din jurul punctului $\mathbf{r}$, iar t_{0i} indică momentele la care diferiți atomi au fost pompați pe nivelul i ($t_{0i} < t$).

Operatorul $\hat{p}$ corespunzător tranziției de dipol pentru funcția de undă a sistemului perturbat (1.150) este definit de relația

$$\hat{p} = d\, \hat{\sigma}_1 \tag{5.33}$$

astfel că

$$\langle \hat{p} \rangle = \mathrm{Urm}\, [\hat{\rho}(a, t_0, t), \hat{p}] = d[\rho_{ab}(a, t_0, t) + \rho_{ab}^{*}(a, t_0, t)] =$$
$$= d(a^*b + ab^*) \tag{5.34}$$

unde $\hat{\sigma}_1$ este matricea lui Pauli.

În scrierea expresiei (5.32), pentru simplificare, se neglijează indicarea dependenței lui $\hat{\rho}$ și $\hat{p}$ de poziția $\mathbf{r}$ a atomului și se consideră atomii în repaus în punctul $\mathbf{r}$ (deci nu mai intervine dependența de $\mathbf{v}$), urmînd ca efectul mișcării atomice să fie considerat ulterior. Dacă se introduce operatorul

$$\hat{\rho}(a, t) = \sum_{t_{0}^{i} < t} \hat{\rho}(a, t_{0i}, t) \tag{5.35}$$

expresia (5.32) devine

$$\mathbf{P}(a, t) = \mathrm{Urm}\, [\hat{\rho}(a, t), \hat{p}]. \tag{5.36}$$

Cu notațiile simplificate de mai sus densitatea ratei medii de pompaj în starea $|a\rangle$ se notează cu $\lambda_a(t_0)$, astfel încît expresia (5.35) capătă forma

$$\hat{\rho}(a, t) = \int \lambda_a(t_0)\, \hat{\rho}(a, t_0, t)\, dt_0. \quad (5.37)$$

Dacă se ia în considerare și posibilitatea excitării atomilor în starea $|b\rangle$ se poate defini și rata de excitare λ_b, astfel încît rata totală de pompaj va fi

$$\lambda = \lambda_a \dot{\rho}(a) + \lambda_b \rho(b) = \begin{bmatrix} \lambda_a & 0 \\ 0 & \lambda_b \end{bmatrix}. \quad (5.38)$$

Ca urmare, se introduce operatorul densitate $\hat{\rho}(\mathbf{r}, t)$ pentru mediul activ sau *matricea populație* prin relațiile echivalente

$$\hat{\rho}\mathbf{r}, (t) = \hat{\rho}(a, t) + \hat{\rho}(b, t) =$$

$$= \int_{-\infty}^{t} dt_0 \left[\lambda_a(t_0)\, \hat{\rho}(a, t_0, t) + \lambda_b(t_0)\, \hat{\rho}(b, t_0, t)\right] = \sum \int_{-\infty}^{t} \lambda_\alpha(t_0) \hat{\rho}(\alpha, t_0, t)\, dt_0. \quad (5.39)$$

deosebit de utilă în cele ce urmează datorită semnificației sale fizice. Astfel

$$\rho_{aa}(\mathbf{r}, t) = N_a(\mathbf{r}, t) \quad (5.40)$$

reprezintă densitatea populației stării $|a\rangle$,

$$\rho_{bb}(\mathbf{r}, \mathrm{t}) = N_b(\mathbf{r}, t) \quad (5.41)$$

reprezintă densitatea populației stării $|\mathrm{b}\rangle$, încît

$$\rho_{aa}(\mathbf{r}, t) - \rho_{bb}(\mathbf{r}, t) = N(\mathbf{r}, t) \quad (5.42)$$

reprezintă densitatea inversiei de populație. Ținîndu-se seama de modul în care a fost definită, matricea de excitare λ ia în considerare rezervoarele de cîștig sau de pompaj (fig. 5.2), după cum matricea Γ ia în considerare rezervoarele de pierderi. Ca urmare, ecuația de mișcare (5.28) poate fi completată cu un termen „de pompaj" sub forma

$$\mathrm{i}\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = \mathrm{i}\lambda + [\hat{H}, \hat{\rho}] - \frac{1}{2}[\hat{\Gamma}, \hat{\rho}]_A. \quad (5.43)$$

Se constată că este posibilă o compensare a pierderilor descrise de $\hat{\Gamma}$ printr-un pompaj suficient descris de λ astfel încît λ reprezintă un *parametru de control* pentru soluțiile ecuației (5.43).

Expresia (5.36) a polarizării se scrie cu ajutorul matricei $\hat{\rho}(\mathbf{r}, t)$ astfel

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \mathrm{Urm}\,[\hat{\rho}(\mathbf{r}, t), \hat{p}]\,] = d[\rho_{ab}(\mathbf{r}, t) + \rho^*_{ab}(\mathbf{r}, t)]. \quad (5.44)$$

Ecuațiile selfconsistente ale teoriei semicuantice

În paragrafele anterioare au fost stabilite ecuațiile semicuantice complete pentru descrierea interacției cîmpului de radiație cu mediul activ și anume:

a) ecuațiile (5.4), (5.6) și (5.12) pentru cîmpul din cavitate funcție de modurile normale ale acesteia;

b) ecuaţiile selfconsistente ale amplitudinilor şi frecvenţelor (5.14) şi (5.15);

c) ecuaţia (5.31) care stabileşte legătura dintre polarizarea macroscopică şi atomii individuali ai mediului activ prin intermediul matricei densitate sau ecuaţia echivalentă (5.44) pentru atomii staţionari;

d) ecuaţia (5.43) de mişcare pentru matricea ρ a mediului activ, în prezenţa pompajului şi a pierderilor;

e) la ecuaţiile de mai sus trebuie adăugată expresia

$$V(t) = -\frac{d}{h} E(\mathbf{r}_0 + \mathbf{v}(t - t_0), t) \tag{5.45}$$

a termenului de interacţie corespunzător atomului descris de matricea $\rho(\alpha, \mathbf{r}_0, t_0, \mathbf{v}, t)$.

Din ecuaţiile a) şi b) rezultă cîmpul electric $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ pentru un termen sursă dat $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$. Pe de altă parte, din ecuaţiile c), d) şi e) se determină dependenţa $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ funcţie de cîmpul electric $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ care este în general neliniară. Operarea staţionară a sistemului corespunde soluţiei simultane a celor două seturi de ecuaţii.

Observaţii. 1: Ecuaţia de mişcare (5.26) este echivalentă cu următorul set de ecuaţii privind elementele de matrice ale operatorului $\hat{\rho}$ pentru atomii individuali ai mediului activ, în prezenţa cîmpului de radiaţie şi a pierderilor

$$\dot{\rho}_{aa} = -\gamma_a \rho_{aa} + iV(t)\,(\rho_{ab} - \rho_{ba}) \tag{5.46}$$

$$\dot{\rho}_{bb} = -\gamma_b \rho_{bb} - iV(t)\,(\rho_{ab} - \rho_{ba}) \tag{5.47}$$

$$\dot{\rho}_{ab} = -i\omega\rho_{ab} - \gamma_{ab}\rho_{ab} + iV(t)\,(\rho_{aa} - \rho_{bb}). \tag{5.48}$$

$$\rho_{ba} = \rho^*_{ab} \tag{5.49}$$

unde

$$\gamma_{ab} = \frac{1}{2}(\gamma_a + \gamma_b) = \gamma. \tag{5.50}$$

Sistemul (5.46) — (5.49) se rezolvă în general prin metoda aproximaţiilor succesive. De exemplu, în absenţa pompajului se obţine mai întîi $\rho^{(0)}_{aa}$ şi $\rho^{(0)}_{bb}$ în aproximaţia de ordinul zero, din ecuaţiile (5.46) şi (5.47) pentru $\rho_{ba} = 0$. Din ecuaţiile (5.48) şi (5.49) în care se introduc valorile $\rho^{(0)}_{aa}$ şi $\rho^{(0)}_{bb}$ rezultă în aproximaţia de ordinul întîi mărimile $\rho^{(1)}_{ab}$ şi $\rho^{(1)}_{ba}$ sub forma:

$$\rho^{(1)}_{ab}(a, \mathbf{r}_0, t_0, \mathbf{v}, t) = i\int_{t_0}^{t} dt' V(t') \exp[(\gamma_{ab} + i\omega)(t' - t) + \gamma_a(t_0 - t')]. \tag{5.51}$$

Expresia (5.51) introdusă în ecuaţiile (5.46) şi (5.47) determină mărimile $\rho^{(2)}_{aa}$ şi $\rho^{(2)}_{bb}$ în aproximaţia de ordinul al doilea

$$\rho^{(2)}_{aa}(a, \mathbf{r}_0, t_0, \mathbf{v}, t') = \int_{t_0}^{t'} dt'' \int_{t_0}^{t''} dt''' V(t'')\, V(t''')\, \{\exp[\gamma_a(t'' - t') +$$

$$+ \gamma_{ab} + i\omega)(t''' - t'') + \gamma_a(t_0 - t''')] + \text{c.c.}\}. \tag{5.52}$$

În continuare, din ecuaţiile (5.48) şi (5.49) rezultă în aproximaţia de ordinul al treilea

$$\rho^{(3)}_{ab} = i\int_{t_0}^{t} dt' V(t')\,(\rho^{(2)}_{aa} - \rho^{(2)}_{bb}) \exp(\gamma_{ab} + i\omega)(t' - t) \tag{5.53}$$

etc.

Expresiile $\rho_{ab}^{(n)}$ de diferite ordine sînt utilizate apoi pentru calculul polarizării $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ conform ecuației (5.30).

2°. Pentru stabilirea semnificației fizice a mărimii γ_{ab} definită de ecuația (5.50) se observă că în absența cîmpului electric ($V(t) = 0$), ecuația (5.48) considerată pentru un singur atom (datorită analogiei cu (5.27)) admite soluția

$$\rho_{ab}(t) = \rho_{ab}(0)\exp[-\gamma_{ab} t - i\Omega t] \tag{5.54}$$

astfel încît din ecuația (5.34) rezultă

$$\langle p \rangle \sim e^{-\gamma_{ab} t} \cos(\Omega t + \varphi_0). \tag{5.55}$$

Întrucît spectrul de frecvențe al expresiei (5.55) determină forma liniei tranziției atomice, se constată că pentru atomii staționari ($v = 0$) acesta este lorentziană, fiind proporțională cu factorul

$$\mathcal{L}(\Omega - \omega) = \frac{1}{(\Omega - \omega)^2 + \gamma_{ab}^2} \tag{5.56}$$

rezultat în concordanță cu formula (4.111).

Prin urmare, semilărgimea liniei spectrale are expresia

$$\Delta\omega_L = \gamma_{ab} = \frac{1}{T_2} \tag{5.57}$$

în concordanță cu relația (1,115).

5.3. Teoria liniară a laserilor cu atomi staționari

Metoda iterativă, indicată la sfrșitul paragrafului precedent, este generală, putînd fi aplicată atît pentru studiul laserilor cu atomi staționari, cît și pentru cei cu atomi în mișcare, pentru care frecvența de tranziție este afectată de efect Doppler, ciocniri etc. Se poate arăta că aproximația de ordinul întîi corespunde operării liniare a laserilor pe cînd aproximațiile de ordin superior ia în considerare și efectele neliniare cum ar fi saturația. Această metodă va fi discutată pe larg în paragrafele următoare dedicate analizei laserilor cu atomi în mișcare.

În acest paragraf se va defini *aproximația liniară*, în mod direct, prin condiția $N = N(z)$, adică prin *independența de timp a diferenței de populație (pentru intervale* γ^{-1}), ținîndu-se seama de cele prezentate în capitolul 1 privind modificarea diferenței de populație în prezența saturației ca efect neliniar. (Această aproximație se mai numește și *aproximația ecuației ratelor*, întrucît conduce la ecuațiile ratelor pentru populații).

Pentru calculul polarizării conform ecuației (5.44) se evaluează elementele nediagonale ρ_{ab} ale matricei populațiilor prin integrarea ecuației (5.48), ținîndu-se seama de expresiile (5.42) și (5.45) și de condiția $N = N(z)$.

Astfel, în ecuația de mișcare

$$\dot{\rho}_{ab} = iV(t)\,N(z) - (i\Omega + \gamma)\,\rho_{ab} \tag{5.58}$$

se introduce mai întîi expresia lui $V(t) = V_{ab}$, admițîndu-se pentru început existența unui singur mod de oscilație al cîmpului de radiație. Ca urmare, conform relației (5.12) se poate scrie

$$V(t) = -\frac{d}{h}A_n(t)U_n(z) = -\frac{d}{h}E_n(t)U_n(z)\cos(\omega_n t + \varphi_n). \tag{5.59}$$

Ecuația (5.58) capătă forma

$$\dot{\rho}_{ab} = -(\mathrm{i}\Omega + \gamma_{ab})\,\rho_{ab} - \frac{\mathrm{i}d}{2\hbar} E_n(t)\, U_n(z) \times$$

$$\times \{\exp[-\mathrm{i}(\omega_n t + \varphi_n)] + \exp[\mathrm{i}(\omega_n t + \varphi_n)]\} \tag{5.60}$$

integrabilă direct în aproximația undei rotitoare întrucît $\omega_n \simeq \Omega$.

Pentru $\dot{\rho}_{ab} = -\mathrm{i}\omega_n\rho_{ab}$ (amplitudini lent variabile) se obține soluția

$$\rho_{ab} = \frac{d}{2\hbar} \frac{E_n(t)\, U_n(z)}{(\omega_n - \Omega) - \mathrm{i}\gamma} N(z) \exp[-\mathrm{i}(\omega_n t + \varphi_n)] \tag{5.61}$$

care cu notația

$$\bar{N}_n = \int_0^L N(z, t)\, U_n^2(z)\, \mathrm{d}z \tag{5.62}$$

determină conform relației (5.44) expresia polarizării

$$P_n(t) = \frac{d^2}{2\hbar} E_n(t) \left[\frac{\bar{N}_n \mathrm{e}^{-\mathrm{i}(\omega_n t + \varphi_n)}}{(\omega_n - \Omega) - \mathrm{i}\gamma} + \mathrm{c.c.} \right] \tag{5.63}$$

(Mărimea $\bar{N}_n$ reprezintă o densitate de inversie medie, care ia în considerare variațiile spațiale ale modului cîmpului). Prin urmare, în aproximația liniară utilizată $N = N(z)$, polarizarea mediului este funcție liniară de cîmpul electric.

Pentru evaluarea cîmpului modului E_n se utilizează ecuația (5.15) astfel că în prealabil din ecuația (5.63) trebuie evaluate expresiile $C_n(t)$ și $S_n(t)$, definite de expresia (5.13), prin identificare. Rezultă

$$C_n = \frac{d^2}{\hbar} E_n \mathscr{L}(\Omega - \omega_n)\, \bar{N}_n \tag{5.64}$$

respectiv

$$S_n = -\frac{d^2}{\hbar} E_n \gamma \mathscr{L}(\Omega - \omega_n)\, \bar{N}_n, \tag{5.65}$$

rezultate în concordanță cu forma lorentziană a susceptibilității atomice a mediului, în aproximația liniară utilizată.

Prin urmare, cîmpul E_n al modului satisface ecuația

$$\dot{E}_n = \frac{E_n \omega_n}{2} \left[\frac{d^2}{\varepsilon_0 \hbar} \gamma \mathscr{L} \bar{N}_n - \frac{1}{Q_n} \right]. \tag{5.66}$$

Condiția de prag de oscilație rezultă din ecuația (5.16) pentru $\dot{E}_n = 0$ $(E_n \neq 0)$, sub forma

$$\frac{d^2}{\varepsilon_0 \hbar} \gamma \mathscr{L} \bar{N}_n = \frac{1}{Q_n}. \tag{5.67}$$

Dacă definim inversia de populație de prag, numită și *critică*

$$\bar{N}_{n,p} = \bar{N}_{n,c}$$

pentru modul n, la rezonanță, prin evaluarea factorului $\mathscr{L}(\Omega - \omega_n)$ se obține

$$\bar{N}_{n,c} = \frac{\varepsilon_0 \hbar \gamma}{d^2 Q_n}, \tag{5.68}$$

în concordanță cu formulele (4.95) și (4.105).

O altă formă a expresiei (5.68) care se poate stabili direct ținînd seama de semnificația mărimilor care intervin este următoarea

$$\bar{N}_{n,c} = \frac{\Omega^2}{c^3} \frac{\Delta\omega}{2\pi} \frac{\tau_{ab}}{\tau_R} \tag{5.69}$$

unde $\Delta\omega$ este lărgimea liniei atomice. Pentru o inversie de populație $N > \bar{N}_{n,c}$ din ecuația (5.66) rezultă o creștere exponențială a amplitudinii modului, care nu are loc în practică, deoarece intervin efectele de saturație care au fost neglijate în aproximația liniară.

Expresia (5.59) pentru M moduri are forma

$$V(t) = -\frac{d}{\hbar} \sum_{n=1}^{M} A_n(t)\, U_n(z) \tag{5.70}$$

astfel încît (5.61) devine

$$\rho_{ab} = \frac{d}{2\hbar} \sum_{n=1}^{M} \frac{E_n(t)\, U_n(z)}{(\omega_n - \Omega) - i\gamma} N(z) \exp\left[-i(\omega_n t + \varphi_n)\right]. \tag{5.71}$$

În ceea ce privește frecvența de oscilație, din ecuația (5.14) pentru $\varphi_n = 0$ se obține

$$\omega_n = \frac{\Omega_n + \mathscr{S}\Omega}{1 + \mathscr{S}} \tag{5.72}$$

unde

$$\mathscr{S} = \frac{\Delta\Omega_n}{\Delta\omega} = \frac{\omega_n}{2\gamma Q_n} \tag{5.73}$$

este *raportul dintre lărgimea modului către lărgimea liniei atomice*.

Relația (5.72), în care ω_n este frecvența de oscilație a laserului pe modul n, Ω este frecvența tranziției iar Ω_n este frecvența modului n, pune în evidență fenomenul de „tîrîre a frecvenței".

5.4. Teoria neliniară a laserilor cu atomi staționari

5.4.1. Expresia neliniară a inversiei de populație

Ipoteza independenței de timp a inversiei de populație, utilizată în aproximația liniară este înlocuită în teoria neliniară cu ipoteza unei diferențe de populație $N(z, t)$ lent variabile în timp, în scopul luării în considerare a influenței emisiei stimulate asupra populațiilor nivelelor laser.

Pentru explicitarea acestei influențe, din ecuațiile (5.70) și (5.71) în care s-a înlocuit

$$N(z, t) = \rho_{aa} - \rho_{bn} \tag{5.74}$$

se obține în aproximația undei rotitoare egalitatea

$$R(\rho_{aa} - \rho_{bb}) = -iV(t)(\rho_{ab} - \rho_{ab}^*) \tag{5.75}$$

unde s-a notat

$$R = -\frac{id^2}{4h^2}\sum_{m=1}^{M}\sum_{n=1}^{M}\left\{\frac{E_m E_n U_m U_n}{[(\Omega - \omega_n) - i\gamma_{ab}]}\times\right.$$

$$\left.\exp\{i[(\Omega_m - \Omega_n)t - \varphi_m - \varphi_n)]\} + \text{c.c.}\right\}. \tag{5.76}$$

Ținind seama de ecuația (5.76), ecuațiile de mișcare (5.46) și (5.47) pentru densitățile de populație ρ_{aa} și ρ_{bb}, capătă forma

$$\dot{\rho}_{aa} = \lambda_a - \gamma_a\rho_{aa} + R(\rho_{bb} - \rho_{aa}) \tag{5.77}$$

$$\dot{\rho}_{bb} = \lambda_b - \gamma_b\rho_{bb} + R(\rho_{aa} - \rho_{bb}). \tag{5.78}$$

În ecuațiile de mai sus, ultimul termen ia în considerare efectul emisiei induse și absorbției, astfel că mărimea R, proporțională cu pătratul amplitudinii modului reprezintă, de fapt, *rata tranzițiilor induse*.

Pentru regim staționar $\dot{\rho}_{aa} = \dot{\rho}_{bb} = 0$, încît

$$N^{(n)} = \rho_{aa} - \rho_{bb} = \frac{\lambda_a/\gamma_a - \lambda_b/\gamma_b}{1 + 2\gamma R/\gamma_a\gamma_b} = \frac{N^{(0)}}{1 + (R/R_s)} \tag{5.79}$$

unde

$$N^{(0)} = \frac{\lambda_a}{\gamma_a} - \frac{\lambda_b}{\gamma_b} \tag{5.80}$$

este *densitatea inversiei pentru cîmp nul*, iar

$$R_s = \frac{\gamma_a\gamma_b}{2\gamma} = 1/(\tau_a + \tau_b) \tag{5.81}$$

este *rata de saturație*. Într-adevăr inversia de populație scade conform relației (5.79) datorită emisiei induse și depinde de intensitate ca urmare a efectelor de saturație. (Se observă că $R = R_s$ pentru $N = N^{(0)}/2$). Prin urmare, efectele neliniare sînt luate în considerare prin substituția $N(z) \to N^{(n)}$, în ecuația (5.71). Diagrama populațiilor conform ecuațiilor (5.77) și (5.78) este prezentată în fig. 5.4.

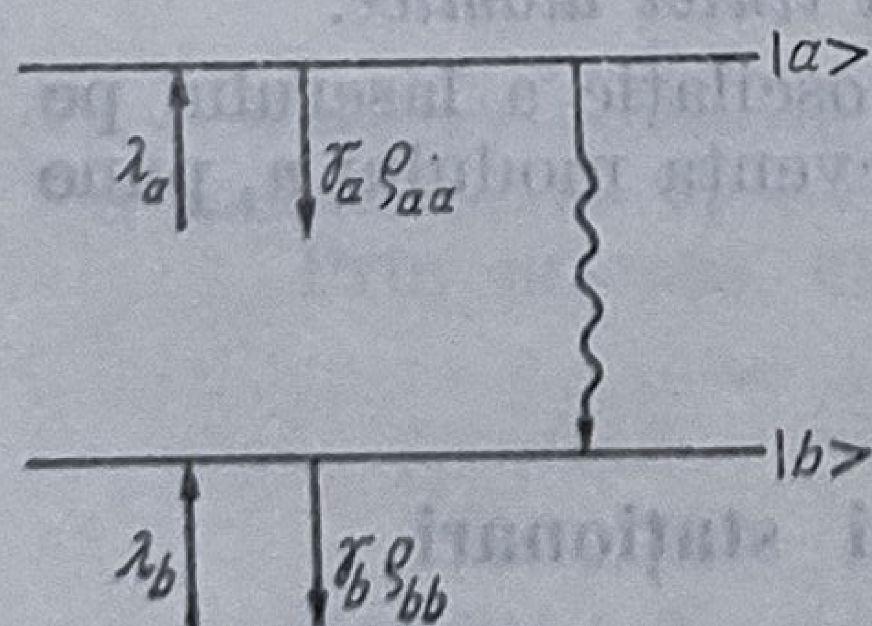


Fig. 5.4

Întrucît R are distribuția spațială a lui $U^2(z) = \sin^2 Kz$, o astfel de dependență vor avea și diferența de populație, și polarizarea mediului.

5.4.2. Ecuațiile de cîmp

Influența inversiei de populație neliniare asupra cîmpului de radiație se poate studia evaluînd mai întîi elementul de matrice neliniar ρ_{ab} prin

substituţia $N(z) \to N^{(n)}$ în ecuaţia (5.71) şi apoi polarizarea neliniară din ecuaţia (5.44); se obţine expresia

$$P_n(t) = -\frac{d^2}{2\hbar} E_n \left\{\frac{2}{T} \frac{N^{(0)}\sin^2 K_n z}{1 + R/R_s} \mathrm{d}z \times\right.$$

$$\times \frac{2(\Omega - \omega_n) \cos(\omega_n t + \varphi_n) + 2\gamma \sin(\omega_n t + \varphi_n)}{(\omega_n - \Omega)^2 + \gamma^2}. \tag{5.82}$$

Ţinîndu-se seama de (5.82), din (5.14) şi (5.15) rezultă un sistem de ecuaţii neliniare complicate pentru amplitudinile şi frecvenţele modurilor. Pentru rezolvarea acestuia se admite o saturaţie slabă a mediului ($R \ll R_s$) astfel încît se poate utiliza dezvoltarea în serie următoare

$$\frac{1}{1 + R/R_s} \simeq 1 - \frac{R}{R_s}. \tag{5.83}$$

Se poate observa că, spre deosebire de aproximaţia liniară, în expresia (5.82), expresia densităţii de inversie medie $\bar{N}_n$ a fost înlocuită cu densitatea de inversie medie neliniară

$$\bar{N}_n^{(n)} = \int_0^L \frac{N^{(0)}}{1+R/R_s} U_n^2(z)\, \mathrm{d}z. \tag{5.84}$$

Ca urmare a dezvoltării (5.38), expresia (5.84) se poate scrie succesiv astfel

$$\bar{N}_n^{(n)} = \bar{N} - \frac{d^2\gamma^2}{\hbar^2\gamma_a\gamma_b} \mathscr{L}(\omega_n - \Omega) \int E_n^2 N^{(0)} U_n^4(z)\mathrm{d}z \tag{5.85}$$

$$\simeq \bar{N}[1 - \gamma^2 \mathscr{L}(\omega_n - \Omega) I_n]$$

unde s-a notat

$$I_n = \frac{3}{2L} \frac{d^2}{\hbar\gamma_a\gamma_b} E_n^2 \tag{5.86}$$

şi

$$\bar{N} = \int_0^L N^{(0)} U_n^2(z)\mathrm{d}z \tag{5.87}$$

astfel încît în ipoteza unei variaţii lente a lui $N^{(0)}$ cu z (datorită acestui mod de dependenţă a ratei de pompaj de z), rezultă

$$\int_0^L N^{(0}U_n^4(z)\, \mathrm{d}z \simeq \frac{3\bar{N}}{2L}. \tag{5.88}$$

Mărimea adimensională I_n din (5.86) reprezintă o măsură a intensităţii modului n, fiind proporţională cu E_n^2.

Intensitatea modului I_n se poate exprima funcţie de densitatea de inversie, dacă Pentru calculul amplitudinii modului E_n din ecuaţia

(5.15), se utilizează expresia (5.65) a lui S_n în care N_n se înlocuie cu $\bar{N}_n^{(n)}$, scrisă în aproximaţia (5.83) sub forma

$$\bar{N}_n^{(n)} = \frac{\bar{N}\mathcal{L}^{-1}(\omega_n - \Omega)}{(\omega_n - \Omega)^2 + (1 + I_n)\gamma^2}. \tag{5.89}$$

Se observă că efectul neliniarităţii (saturaţiei) constă în creşterea lărgimii efective de rezonanţă cu factorul $\sqrt{1 + I_n}$ (power broadening).

Ţinîndu-se seama de (5.89) ecuaţia (5.15) se poate scrie astfel

$$\dot{E}_n = \frac{\omega_n}{2}\left(\frac{d^2\gamma\bar{N}}{\varepsilon_0\hbar(\omega_n - \Omega)^2 + \gamma^2(1 + I_n)} - \frac{1}{Q_n}\right)E_n. \tag{5.90}$$

Soluţia de regim staţionar a ecuaţiei (5.90) conduce la următoarea expresie pentru I_n

$$I_n = \frac{\bar{N}}{\bar{N}_c} - 1 - \frac{(\omega_n - \Omega)^2}{\gamma_{ab}^2} \tag{5.91}$$

unde inversia de densitate critică N_c este dată de expresia (5.68).

Raportul $\mathcal{N} = \bar{N}/\bar{N}_c$ se numeşte *excitaţie relativă*. (La rezonanţă $(\omega_n = \Omega)$ astfel că $I_n = \bar{N}/\bar{N}_c - 1$, iar pentru $\bar{N} = \bar{N}_c$ rezultă $I_n = 0$.)

Evident că rezultatele obţinute mai sus sînt valabile în apropierea pragului datorită condiţiei $R \ll R_s$. Din analiza expresiei (5.91) rezultă şi faptul că intensitatea de saturaţie este invers proporţională cu probabilitatea de tranziţie dar este direct proporţională cu rata de amortizare a nivelului laser superior. Totodată, se constată că intensitatea oscilaţiei este direct proporţională cu rata de pompaj a nivelului laser superior.

În continuare, se poate analiza ecuaţia frecvenţelor de oscilaţie (5.14) în cazul neliniar prin evaluarea componentei în cuadratură a polarizării C_n. Se constată că ecuaţia de dispersie (5.72) nu se modifică ca urmare a rolului jucat de factorul de calitate Q în evaluarea polarizării.

5.5. Teoria laserilor cu atomi în mişcare

Spre deosebire de laserii cu atomi staţionari, unde intervine lărgirea omogenă a liniei spectrale a atomilor individuali, în cazul laserilor cu atomi în mişcare intervine linia spectrală lărgită neomogen (Doppler) a unui ansamblu de atomi privit ca un întreg.

În acest caz, atomii interacţionează cu un cîmp electric modificat, dependent de vitezele atomilor în mişcare, ca urmare a unei distribuţii a frecvenţelor de rezonanţă aparente ale atomilor.

5.5.1. Metoda integrării aproximative a ecuaţiilor dependente de viteză

Evaluarea polarizării macroscopice $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ a mediului, ai cărui atomi cu viteza $\mathbf{v}$ se face conform relaţiei (5.30) însumînd contribuţiile tuturor atomilor, indiferent de viteza şi poziţia acestora, sub forma

$$P(\mathbf{r}, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\mathbf{v} \sum \int_{\infty}^{t} dt_0 \int_0^L d\mathbf{r}_0\, \lambda_\alpha(\mathbf{r}_0, t_0, \mathbf{v}) \times$$

$$\times\, \rho_{ab}(\alpha, \mathbf{r}_0, t_0, \mathbf{v}, t)\, \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) - \mathbf{v}(t - t_0) + \text{c.c.} \tag{5.92}$$

sau echivalent

$$P(\mathbf{r}, t) = d \int_{-\infty}^{+\infty} \rho_{ab}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)\, dv + \text{c.c.} \tag{5.93}$$

unde

$$\rho_{ab}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) = \sum_{\alpha} \int_{\infty}^{t} dt_0 \int_{0}^{L} dr_0\, \lambda_\alpha(\mathbf{r}_0, t_0, \mathbf{v})\, \rho(\alpha, \mathbf{r}_0, t_0, \mathbf{v}, t) \times$$
$$\times\, \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0 - \mathbf{v}(t - t_0)). \tag{5.94}$$

Pentru evaluarea integralelor de mai sus se consideră perturbația

$$V(t) = V(\mathbf{r}_0, t_0, \mathbf{v}, t) = -\frac{d}{\hbar} \sum_{n=1}^{M} E_n U_n[\mathbf{r}_0 + \mathbf{v}(t - t_0)] \cos(\omega_n + \varphi_n) \tag{5.95}$$

unde conform definiției (5.6)

$$U_n(r) = \sin[K_n r - K_n v(t - t')] \tag{5.96}$$

astfel încît frecvența oscilație a atomilor este supusă schimbării Doppler : $\omega_n \to \omega_n \pm K_n v$.

În cele ce urmează se consideră rata de pompaj $\lambda_a(\mathbf{r}, t, \mathbf{v})$ dependentă de distribuția maxwelliană a vitezelor descrisă de funcția

$$f(v) = (u\pi^{1/2})^{-1} \exp\left(-\frac{v^2}{u^2}\right), \tag{5.97}$$

$u = \sqrt{2kT/m}$ fiind viteza cea mai probabilă a atomilor, astfel încît

$$\lambda_a(\mathbf{r}, t, \mathbf{v}) = \lambda_a(\mathbf{r}, t)\, f(v). \tag{5.98}$$

În continuare, se rezolvă ecuațiile pentru elementele de matrice ale „matricei populație'' (5.79), obținute din ecuația (5.43) prin explicitarea componentelor ρ_{aa}, ρ_{bb} și ρ_{ab}, ținîndu-se seama de relațiile (5.96) și (5.98) și utilizîndu-se aproximația ecuației ratelor introdusă în § 5.3 (diferența de populație variază lent în timp pe intervale γ^{-1}).

Formal, ecuațiile pentru elementele matricei populație sînt cele pentru un singur atom (5.46) — (5.50) cu diferența că la ecuațiile (5.46) și (5.47) se adaugă în partea dreaptă ratele de pompaj λ_a respectiv λ_b. Prin integrarea ecuației pentru ρ_{ab}, în ipotezele de mai sus, pentru un singur mod, se obține

$$\rho_{ab}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) = -\frac{\mathrm{i}}{4}\left(\frac{d}{\hbar}\right) E_n \exp[-\mathrm{i}(\omega_n t + \varphi)] \times$$
$$\times\, U_n(r)\, (\rho_{aa} - \rho_{bb})\, [\mathscr{L}(\omega_n - \Omega + K_n v) + \mathscr{L}(\omega_n - \Omega - K_n v)]. \tag{5.99}$$

Introducînd exprssia (5.99) în ecuațiile de mișcare pentru ρ_{aa} respectiv ρ_{bb}, acestea se pot pune sub forma (5.77), respectiv (5.78), evidențiindu-se rata tranziției induse $R(\mathbf{r}, \mathbf{v})$ sub forma (pentru M moduri)

$$R(\mathbf{r}, \mathbf{v}) = \frac{d^2}{4\hbar^2} \sum_{n=1}^{M} \gamma_{ab} [\mathscr{L}(\omega_n - \Omega - K_n v) + \mathscr{L}(\omega_n - \Omega + K_n v)] \times$$
$$\times\, E_n^2 U_n^2(z) \tag{5.100}$$

analogă expresiei (5.76). Expresia (5.100) este utilizată în continuare pentru analiza inversiei de populaţie $N^{(n)}(\mathbf{r}, \mathbf{v})$, care prin analogie cu (5.70) este definită prin

$$N^{(n)}(\mathbf{r}, \mathbf{v}) = \rho_{aa}(\mathbf{r}, \mathbf{v}) - \rho_{bb}(\mathbf{r}, \mathbf{v}) = \frac{N^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)}{1 + R(\mathbf{r}, \mathbf{v})/R_s} \tag{5.101}$$

unde

$$N^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) = \frac{\lambda_a(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)}{\gamma_a} - \frac{\lambda_b(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)}{\gamma_b}, \tag{5.102}$$

Ca urmare, inversia de populaţie pentru atomii avînd viteza $\mathbf{v}$ devine

$$N^{(n)}(\mathbf{r}, \mathbf{v}) = \frac{f(v) N^{(0)}(\mathbf{r})}{1 + R(\mathbf{r}, \mathbf{v}) R_s}. \tag{5.103}$$

Întrucît rata tranziţiei induse prezintă maxime pentru viteze determinate de relaţia

$$\omega_n - \Omega = \pm K_n v, \tag{5.104}$$

dependenţa $N^{(n)}(\mathbf{r}, \mathbf{v})$ funcţie de viteză, reprezentată grafic în fig. 5.5, prezintă două minime simetrice în raport cu profilul liniei Doppler (hole-burning), lărgimea acestor minime fiind conform relaţiei (5.99) egală cu cea a liniei lorentziene omogene $\left(\Delta\omega \simeq \frac{\gamma}{K_n}\right)$.

În cazul particular al unui singur mod la rezonanţă $\omega_n = \Omega$, cele două minime se suprapun în punctul $v = 0$. Fenomenul, cunoscut sub numele de *depopulare selectivă*, evidenţiază interacţia puternică a atomilor

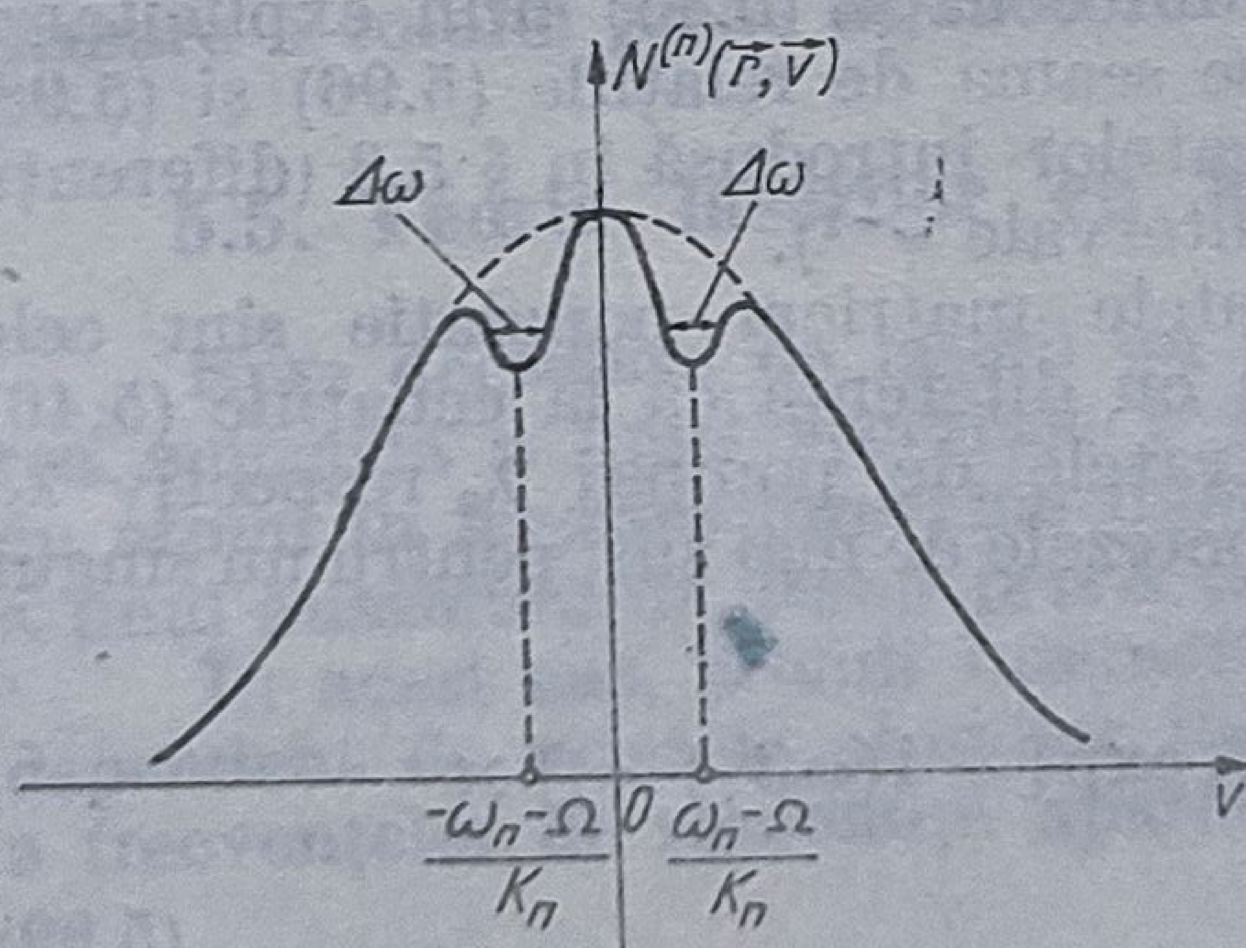


Fig. 5.5.

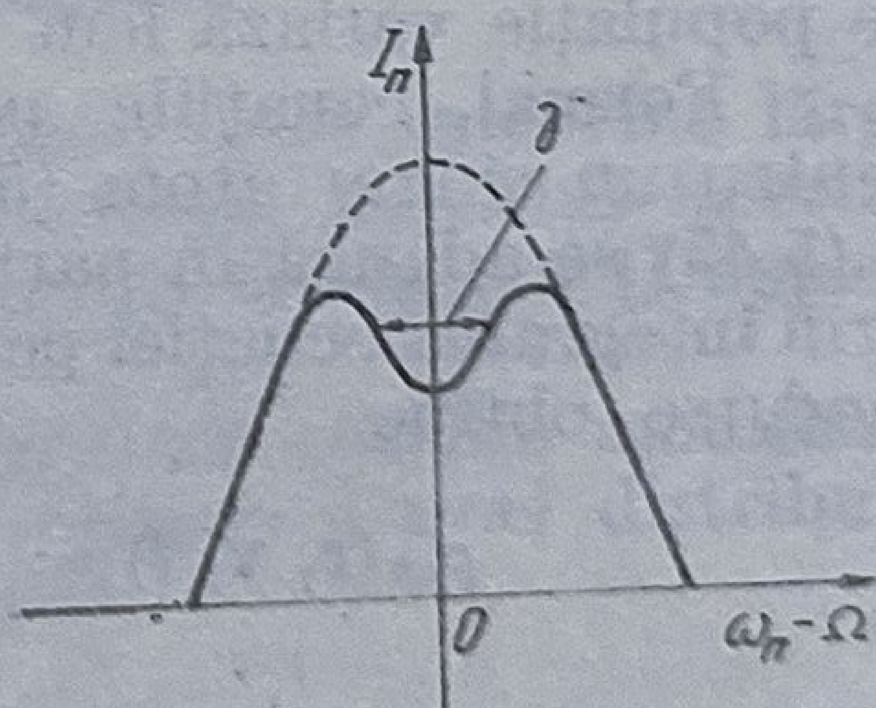


Fig. 5.6.

cu cîmpul electric rezonant (în sistemul de referinţă al atomilor, care mişcă cu vitezele **v**, respectiv **—v**).

În condiţii de rezonanţă, poate fi constatată existenţa unui minim numit *Lamb dip* şi pe diagrama intensităţii modului I_n funcţie de dezacordul $\omega_n - \Omega$(fig. 5.6). (Această dependenţă, confirmată experimental a fost prezisă teoretic de către Lamb, Jr.).

8.5.2. Metoda iterativă a lui Lamb

Expresia polarizării macroscopice medii în punctul $(\mathbf{r}, t)$ are forma generală (5.30) sau în aproximația amplitudinilor variabile forma (5.31), fiind obținută prin însumarea soluțiilor (5.51) — (5.53) peste toți atomii, cu considerarea funcției de distribuție pentru vitezele atomilor (5.97).

a) În aproximația de ordinul întîi se evaluează

$$\rho_{ab}^{(1)}, \text{ pentru } \rho_{aa} = \rho_{bb} = 0.$$

Se obține expresia

$$\rho_{ab}^{(1)}(a, \mathbf{r}\,\mathbf{v}, t) = \int_{-\infty}^{t} \mathrm{d}t_0 \lambda_a (\mathbf{r}_0 = \mathbf{r} - \mathbf{v}t + \mathbf{v}t_0, \mathbf{v}, t_0) \times \tag{5.105}$$

$$\times\, \rho_{ab}^{(1)}(a, \mathbf{r}_0 = \mathbf{r} - \mathbf{v}t + \mathbf{v}t_0, t_0, \mathbf{v}, t).$$

Dacă $\lambda_a(\mathbf{r}_0, \mathbf{v}, t)$ este o funcție lent variabilă de timp și de poziție, ținîndu-se seama de expresia (5.95) a perturbației și de expresia (5.98) a ratei de pompaj rezultă pentru polarizarea macroscopică (5.30) în punctul $(\mathbf{r}, t)$ expresia

$$P^{(1)}(\mathbf{r}, t) = -\left(\frac{\mathrm{i}d^2}{2\hbar}\right)\left(\frac{\lambda_a(\mathbf{r}, t)}{\gamma_a} - \frac{\lambda_b(\mathbf{r}, t)}{\gamma_b}\right) \times$$

$$\times \sum_n E_n(t) \exp\left[-\mathrm{i}(\omega_n t - \varphi_n(t)\right] \times$$

$$\times \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}v \int_0^{\infty} \mathrm{d}\tau' f(v) \sin\left[K_n(r - v\tau')\right] \exp\left[-\gamma\tau' - \mathrm{i}(\Omega - \omega_n)\tau'\right] + \text{c.c.} \tag{5.106}$$

Influența polarizării macroscopice asupra unui anumit mod n este determinată de componenta Fourier spațială corespunzătoare a expresiei (5.106) conform relației

$$P_n^{(1)}(t) = \frac{2}{L}\int_0^L \mathrm{d}r\, P^{(1)}(\mathbf{r}, t) \sin K_n r =$$

$$= -\left(\frac{d^2}{2\hbar\, Ku}\right) \sum_m \{E_n(t) \exp\left[-\mathrm{i}\omega_m t - \mathrm{i}\varphi_m(t)\right] \times \tag{5.107}$$

$$\times N_{m-n}(t)\, Z(\omega_m - \Omega) + \text{c.c.}\}$$

unde componenta Fourier spațială $N_{m-n}(t)$ a lui $N(r, t)$ are forma

$$N_{n-m}(t) = \frac{1}{L}\int_0^L \mathrm{d}r\, N(r, t) \cos\left[(K_n - K_m)\, r\right] \tag{5.108}$$

iar

$$Z(\omega_m - \Omega) = Z(\omega_m - \Omega, \gamma, Ku) =$$

$$= \mathrm{i}Ku \int_0^L \mathrm{d}\tau \exp\left[\mathrm{i}(\omega_m - \Omega)\,\tau - \gamma\tau - \frac{1}{4}K^2u^2\tau^2\right] \tag{5.109}$$

este *funcția complexă de dispersie a plasmei*, $K = \omega/c$, Ku fiind lărgimea Doppler a liniei spectrale.

În cazul particular în care densitatea de excitare $N(\mathbf{r}, t)$ nu depinde de poziția în cavitate, $N(\mathbf{r}, t) \rightarrow \bar{N}(t)$, astfel încît

$$P^{(1)}(t) = -(d^2/2\hbar Ku)\, E_n(t)\, \bar{N}(t) \cdot \exp[-\mathrm{i}(\omega_n t - \varphi_n(t)] \times \times Z(\omega_n - \Omega) + \text{c.c.} \tag{5.110}$$

Întrucît este funcție liniară de $E_n(t)$, $P_n^{(1)}(t)$ conține aceleași frecvențe ca și cîmpul cavitații. În expresia (5.110) pot fi puse în evidență cantitățile $S_n^{(1)}$ și $C_n^{(1)}$, conform definiției (5.13) sub forma

$$S_n^{(1)} = -\frac{d^2}{\hbar Ku} \bar{N}(t)\, Z_i(\omega_n - \Omega)\, E_n \tag{5.111}$$

respectiv

$$C_n^{(1)} = -\frac{d^2}{\hbar Ku} \bar{N}(t) Z_r(\omega_n - \Omega)\, E_n \tag{5.112}$$

unde Z_r și Z_i sînt părțile reală și imaginară ale funcției de dispersie a plasmei Z.

Introducînd expresiile (5.111) și (5.112) în ecuațiile (5.15) și 5.14) se obțin soluțiile de regim staționar următoare

$$\dot{E}_n = 0\,; \quad \frac{d^2}{\varepsilon_0 \hbar Ku} \bar{N}\, Z_i = \frac{1}{Q_n} \tag{5.113}$$

respectiv

$$\dot{\varphi}_n = 0\,; \; \omega_n = \Omega_n + \frac{1}{2} \frac{\omega}{Q_n} \frac{Z_r}{Z_i}. \tag{5.114}$$

Expresia (5.113) este echivalentă cu condiția de oscilație (4.9) stabilită de Schawlow și Townes, dacă se utilizează o aproximație corespunzătoare pentru Z.

Pe de altă parte, expresia (5.114) pune în evidență efectul cunoscut de tîrîre a frecvenței pentru laserii cu atomi în mișcare. Prin urmare, în aproximația liniară sînt stabilite condiția de oscilație și tîrîrea frecvenței modurilor ca și pentru laserii cu atomi staționari.

b) În aproximația de ordinul al treilea, prin analogie cu (5.105) se poate scrie

$$\rho_{ab}^{(3)}(\mathbf{r},\mathbf{v}, t) = \sum_{\alpha=a,\, b} \lambda_\alpha(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \int_{-\infty}^{t} \mathrm{d}t_0\, \rho_{ab}^{(3)}(\alpha, \mathbf{r}_0 = \mathbf{r} - \mathbf{v}(t - t_0), t_0, \mathbf{v}, t). \tag{5.115}$$

Utilizîndu-se metoda dezvoltată pentru aproximația de ordinul întîi se obține pentru polarizarea $P_n^{(3)}(t)$ expresia [61]

$$P_n^{(3)} = \left(\frac{\mathrm{i}d^4}{32\hbar^3 \gamma_a}\right) \bar{N}(t)\, E_n^3 \exp[-\mathrm{i}(\omega_n t + \varphi_n(t)] \times \times \int_0^\infty \mathrm{d}\tau' \int_0^\infty \mathrm{d}\tau''' \left\{\exp\left[-\frac{1}{4} K^2u^2(\tau' - \tau''')^2\right] + + \exp\left[-\frac{1}{4} K^2u^2(\tau' + \tau''')^2\right]\right\} \cdot \{\exp[-(\gamma + \mathrm{i}\Omega - \mathrm{i}\omega_n)\, \tau'''] + + \exp[-(\gamma + \mathrm{i}\omega_n - \mathrm{i}\Omega)\tau''']\} \cdot \exp[-(\gamma + \mathrm{i}\Omega - \mathrm{i}\omega_n\, \tau')] + + (\text{aceeași expresie cu } \gamma_b \text{ în loc de } \gamma_a) + \text{c.c.} \tag{5.116}$$

De asemenea, la „limita Doppler" definită prin $Ku \gg \gamma$ se obține

$$P_n^{(3)}(t) = \left(\frac{i\,\pi^{1/2}}{16\,\hbar^3}\right) d^4(\gamma K u)\,(\gamma_a\gamma_b)^{-1}\bar{N}(t) \times$$

$$\times [\mathscr{D}(0) + \mathscr{D}(\Omega - \omega_n)] \cdot E_n^3 \exp[-i\omega_n t - i\varphi_n(t)] + \text{c.c.} \quad (5.117)$$

unde $\mathscr{D}(\omega) = 1/(\gamma + i\omega)$.

În continuare, evaluînd mărimile $S_n^{(3)}$ și $C_n^{(3)}$ din ecuația (5.117) și introducîndu-le în ecuațiile (5.15) și (5.14) se obțin soluțiile de regim staționar

$$E_n^2 = \frac{8 Z_i(0)\,\hbar^2\gamma_a\gamma_b}{\pi^{1/2} d^2}\left[\frac{Z_i(\omega_n - \Omega)}{Z_i(0)} - \frac{1}{\mathscr{N}}\right]\frac{1}{1 + \gamma^2\mathscr{L}(\Omega - \omega_n)} \quad (5.118)$$

respectiv

$$\omega_n = \Omega_n + \sigma_n + \rho_n E_n^2 \quad (5.119)$$

unde

$$\mathscr{N} = \frac{\bar{N}}{\bar{N}_c} \quad (5.120)$$

este excitația relativă.

În ecuația (5.118) E_n^2 reprezintă *intensitatea cîmpului la saturație.* Se poate scrie

$$E_n^2 = \frac{\alpha_n}{\beta_n} \quad (5.121)$$

unde

$$\alpha_n = \frac{1}{2}(\omega/Q_n)\{[Z_i(\omega_n - \Omega)/Z_i(0)] \cdot \mathscr{N} - 1\} \quad (5.122)$$

este factorul de cîștig net liniar, iar

$$\beta_n = \frac{1}{16}\pi^2\left(\frac{\omega}{Q_n}\right)\left[\frac{\mathscr{N} d^2}{\hbar^2\gamma_a\gamma_b Z_i(0)}\right](1 + \gamma\mathscr{L}(\Omega - \omega_n)) \quad (5.123)$$

este factorul de saturație.

De asemenea, în ecuația (5.119) s-au introdus coeficienții σ_n și ρ_n:

$$\sigma_n = \frac{1}{2}\left(\frac{\omega}{Q_n}\right)\mathscr{N} Z_r(\Omega_n - \Omega)/Z_i(0) \quad (5.124)$$

este factorul de tîrîrea frecvenței spre centrul liniei laser (mode pulling), iar

$$\rho_n = \frac{1}{16}\pi^{1/2}\left(\frac{\omega}{Q_n}\right)\mathscr{N}\left[\frac{d^2}{\hbar^2\gamma_a\gamma_b Z_i(0)}\right]\gamma(\Omega_n - \Omega)\,\mathscr{L}(\Omega - \Omega_n) \quad (5.125)$$

este factorul tîrîrea frecvenței spre exteriorul liniei laser (mode pushing). (S-a înlocuit în mod aproximativ ω_n cu Ω_n).

Din examinarea expresiilor (5.118) și (5.121) rezultă și efectele de depopulare selectivă și „Lamb dip" discutate și în § 5.5.1.

5.6. Competiția modurilor și condițiile de stabilitate

Rezultatele obținute în paragrafele anterioare pot fi extinse pentru studiul regimurilor de funcționare multimodală a dispozitivelor laser. În principiu, în cazul oscilației pe mai multe moduri, datorită neliniarităților mediului apar pulsații ale diferenței de populație pe frecvențe egale cu multipli ai ecartului de frecvență dintre două moduri adiacente, evidențiate prin fenomenul „de bătăi".

Fenomenele de competiție a modurilor conduc la cerințe speciale de stabilitate pentru funcționarea multimodală. Atunci cînd sînt excitate mai multe moduri, din analiza expresiei (5.76) a ratei de tranziție indusă R, rezultă că vor apare pulsații ale polarizării și diferenței de populație, caracteristice oscilațiilor neliniare, corespunzător frecvențelor $\omega_m - \omega_n$.

Dacă se neglijează aceste pulsații (de exemplu, în cazul laserilor cu gaz acestea sînt relativ scăzute întrucît $\omega_m - \omega_n > \gamma_{ab}$), atunci restrîngînd însumarea în expresia lui R la cazul $m = n$ se obține

$$R = \frac{d^2}{2\hbar^2} \sum_{n=1}^{M} \gamma_{ab} \mathscr{L}(\Omega - \omega_n) E_n^2(t)\, U_n^2(z) \tag{5.126}$$

utilă în stabilirea ecuațiilor cuplate ale modurilor .

Astfel, dacă se evaluează expresia (5.84) ținîndu-se seama de dezvoltarea (5.83) și de formula simplificată (5.126) a lui R rezultă

$$\bar{N}_n^{(n)} \simeq \bar{N} - \frac{3}{2L} \frac{d^2}{\hbar^2 \gamma_a \gamma_b} \gamma_{ab}^2 \mathscr{L}(\omega_n - \Omega)\, \bar{N} E_n -$$

$$- \frac{d^2}{L\hbar^2 \gamma_a \gamma_b} \gamma_{ab}^2 \sum_{m \neq n} \mathscr{L}(\omega_m - \Omega)\left(\bar{N} + \frac{1}{2} N_{2(m-n)}\right) E_m^2, \tag{5.127}$$

unde $N_{2(m-n)}$ este definit astfel

$$N_{2(m-n)} = \frac{1}{L} \int_0^L N^{(0)} \cos\left[2(k_m - k_n)z\right] dz. \tag{5.128}$$

Ținîndu-se seama de expresiile (5.65) și (5.127) unde $\bar{N}_n \to \bar{N}_n^{(n)}$, din ecuația (5.15) rezultă următorul set de ecuații neliniare cuplate ale amplitudinilor modurilor

$$\dot{E} = \alpha_n E_n - \beta_n E_n^3 - \sum_{(m \neq n)}^{M} \theta_{mn} E_n E_m^2 \quad n = 1, 2, \ldots, M \tag{5.129}$$

unde α_n este coeficientul de cîștig efectiv

$$\alpha_n = \frac{\omega_n d^2}{2\, \varepsilon_0 \hbar \gamma_a \gamma_b} \bar{N} \gamma_{ab}^2 \mathscr{L}(\omega_n - \Omega) - \frac{\Omega_n}{2Q_n}, \tag{5.130}$$

β_n este coeficientul de saturație pentru modul n

$$\beta_n = \frac{\omega_n}{2\varepsilon_0} \frac{d^4 \gamma_{ab}^3}{\hbar^3 \gamma_a \gamma_a} \mathscr{L}^2(\omega_n - \Omega) \frac{3}{2} \frac{\bar{N}}{L}, \tag{5.131}$$

iar θ_{mn} este coeficientul de saturaţie neliniară mutuală

$$\theta_{mn} = \frac{\omega_n}{2\varepsilon_0} \frac{d^4\gamma_{ab}^3}{\hbar^3\gamma_a\gamma_a} \mathscr{L}(\omega_m - \Omega) \mathscr{L}(\omega_n - \Omega) \frac{1}{L}\left(\bar{N} + \frac{1}{2} N_{2(m-n)}\right) \simeq \theta_{nm}. \tag{5.132}$$

Ecuaţiile (5.129) se pot obţine şi direct din ecuaţiile lui Lamb [86] pentru laserii multimodali dacă se neglijează termenii de fază al căror efect, în general, poate fi neglijat într-o aproximaţie suficient de bună.

Ecuaţiile cuplate ale amplitudinilor şi frecvenţelor modurilor obţinute în cazul general au forma [62]

$$\dot{E}_n = \alpha_n E_n - \sum_r \sum_s \sum_p E_r E_s E_p \,\mathrm{Im}\,\{\Theta_{nrsp} \exp\,[\mathrm{i}\psi_{nrsp}]\} \tag{5.133}$$

$$\omega_n + \dot{\varphi}_n = \Omega_n + \sigma_n = \sum_r \sum_s \sum_p E_r E_s E_p E_n^{-1} \mathrm{Re}\,\{\Theta_{nrsp} \exp\,[\mathrm{i}\psi_{nrsp}]\} \tag{5.134}$$

unde Θ_{nrsp} este un termen de saturaţie, ψ_{nrsp} este unghiul de fază relativ iar celelalte mărimi au semnificaţii cunoscute.

Cuplajul modurilor, reflectat de ecuaţiile (5.133) şi (5.134) a fost pe larg discutat în literatura de specialitate, în strînsă legătură cu competiţia modurilor şi efectele de coerenţă atomică [320]. Cmpetiţia modurilor va fi analizată în cele ce urmează pentru laserul cu două şi trei moduri de oscilaţie peste prag, pornindu-se de la studiul condiţiilor de stabilitate, pentru diferite condiţii de cuplaj între moduri.

5.6.1. Metoda analitică de studiu a competiţiei şi stabilităţii modurilor

Se utilizează pentru studiul competiţiei modurilor şi a condiţiilor de stabilitate ecuaţiile cuplate de amplitudine (5.129) şi teorema de stabilitate a lui Liapunov, evidenţiindu-se corelaţia dintre condiţiile de stabilitate şi cuplaj rezultată din caracteristicile neliniare ale mediului activ [99].

a) *Laserul cu două moduri*. În cazul laserului cu două moduri peste prag, intensităţile modurilor $I_1 = E_1^2$ şi $I_2 = E_2^2$ verifică ecuaţiile diferenţiale obţinute prin particularizare din ecuaţiile (5.129)

$$\dot{I}_1 = 2\, I_1(\alpha_1 - \beta_1 I_1 - \theta_{12} I_2) \tag{5.135}$$

$$\dot{I}_2 = 2I_2(\alpha_2 - \theta_{21}I_1 - \beta_2 I_2) \tag{5.136}$$

unde $\theta_{12} \simeq \theta_{21} = \theta > 0,\ \alpha > 0,\ \beta > 0.$

Soluţia staţionară a ecuaţiilor (5.135) şi (5.136) se obţine din condiţia $\dot{I}_1 = \dot{I}_2 = 0$. În afară de soluţia banală $I_1 = I_2 = 0$, se obţin soluţiile de operare monomod

$$I_1 = 0, \quad I_2 = \frac{\alpha_2}{\beta_2}; \quad I_1 = \frac{\alpha_1}{\beta_1}, \quad I_2 = 0 \tag{5.137}$$

şi soluţia de operare cu două moduri (I_{10}, I_{20}) corespunzătoare intersecţiei dreptelor $\dot{I}_1 = \dot{I}_2 = 0$.

Din teorema lui Liapunov de studiu a stabilității soluțiilor sistemului de ecuații (5.135) și (5.136) se obține ecuația seculară

$$D(\lambda)=\lambda^2-2\lambda(\beta_1 I_{10}+\beta_2 I_{20})-4\,\theta_{12}\theta_{21}I_{10}\,I_{20}+4\,\beta_1\beta_2 I_{10}\,I_{20}=0 \quad (5.138)$$

astfel încît rezultă condiția de stabilitate

$$8\,I_{10}I_{20}\,(\beta_1\beta_2-\theta_{12}\theta_{21})\,(\beta_1 I_{10}+\beta_2 I_{20})>0. \quad (15.139)$$

Această condiție este satisfăcută dacă

$$\beta_1\beta_2-\theta_{12}\theta_{21}>0 \text{ sau } C=\theta_{12}\theta_{21}/\beta_1\beta_2\leqslant 1 \quad (5.140)$$

unde C este constanta de cuplaj a modurilor, ceea ce indică *cuplajul slab* al modurilor care oscilează avînd același coeficient de cîștig. Condiția de *cuplaj tare*

$$\beta_1\beta_2<\theta_{12}\theta_{21} \text{ sau } C>1 \quad (5.141)$$

corespunde operării instabile, astfel încît oscilația modului dominant inhibă oscilația celui de-al doilea mod. Pentru coeficienți de cîștig diferiți, modul dominant îl inhibă pe celălalt, pentru orice condiție de cuplaj.

b) *Laserul cu trei moduri*. Ecuațiile cuplate pentru amplitudinile modurilor, pentru laserul cu trei moduri peste pragul de oscilație, au forma

$$\begin{aligned}\dot{I}_1&=2I_1(\alpha_1-\beta_1 I_1-\theta_{12}I_2-\theta_{13}I_3)\\ \dot{I}_2&=2I_2(\alpha_2-\beta_2 I_2-\theta_{23}I_3-\theta_{21}I_1)\\ \dot{I}_3&=2I_3(\alpha_3-\beta_3 I_3-\theta_{31}I_1-\theta_{32}I_2).\end{aligned} \quad (5.143)$$

Din ecuația seculară a acestui sistem

$$D(\lambda)=\begin{vmatrix}-2\beta_1 I_{10}-\lambda & -2\theta_{12}I_{10} & -2\theta_{13}I_{10}\\ -\theta_{21}I_{20} & -2\beta_2 I_{20}-\lambda & -2\theta_{23}I_{20}\\ -2\theta_{31}I_{30} & -2\theta_{23}I_{30} & -2\beta_3 I_{30}-\lambda\end{vmatrix}=0 \quad (5.145)$$

rezultă ca și în cazul laserului cu două moduri condiția de stabilitate generală

$$\begin{aligned}&\beta_2 I_{20}^2 I_{30}(\beta_2\beta_3-\theta_{23}\theta_{32})+\beta_3 I_{20}I_{30}^2(\beta_2\beta_3-\theta_{23}\theta_{32})+\\ &+\beta_2 I_{10}I_{20}^2(\beta_1\beta_2-\theta_{12}\theta_{21})+\beta_1 I_{10}^2 I_{20}(\beta_1\beta_2-\theta_{12}\theta_{21})+\\ &+\beta_3 I_{10}I_{30}(\beta_1\beta_3-\theta_{13}\theta_{31})+\beta_1 I_{10}^2 I_{20}\,(\beta_1\beta_3-\theta_{13}\theta_{31})+\\ &+I_{10}I_{20}I_{30}(\beta_1\beta_2\beta_3-\theta_{21}\theta_{13}\theta_{32})+I_{10}I_{20}I_{30})\,(\beta_1\beta_2\beta_3-\\ &-\theta_{31}\theta_{12}\theta_{23})>0.\end{aligned} \quad (5.146)$$

Această inegalitate este satisfăcută dacă sînt îndeplinite simultan următoarele condiții

$$\begin{aligned}&\beta_1\beta_2>\theta_{12}\theta_{21},\ \beta_2\beta_3>\theta_{23}\theta_{32},\ \beta_3\beta_1>\theta_{13}\theta_{31}\\ &\beta_1\beta_2\beta_3>\theta_{12}\theta_{23}\theta_{31},\ \beta_1\beta_2\beta_3>\theta_{21}\theta_{32}\theta_{13}.\end{aligned} \quad (5.147)$$

Aceste condiții definesc cuplajul slab pentru laserul cu trei moduri de oscilație.

Condiţiile de stabilitate obţinute mai sus, utilizîndu-se teorema de stabilitate a lui Liapunov sînt în concordanţă cu cele obţinute prin alte metode, de exemplu, prin metoda planului fazelor prezentată în continuare.

5.6.2. Metoda planului fazelor de analiză a competiţiei şi stabilităţii modurilor

Metoda planului fazelor a lui Poincaré constă în trasarea curbelor de fază determinate de soluţiile $I_1(t)$ şi $I_2(t)$ în planul $(I_1 I_2)$ ţinînd seama de condiţiile iniţiale $I_1(t_0)$ şi $I_2(t_0)$. O soluţie staţionară este stabilă dacă toate curbele de fază în vecinătatea lui I_{10} şi I_{20} se strîng în punctul determinat de aceste valori. Panta tangentei la curba de fază $I_2(I_1)$ în orice punct este dată de ecuaţia

$$\frac{dI_2}{dI_1} = \frac{\dot{I}_2}{\dot{I}_1} = \frac{I_2}{I_1} \frac{(\alpha_2 - \theta I_1 - \beta I_2)}{(\alpha_1 - \beta I_1 - \theta I_2)} = 0 \,. \tag{5.148}$$

Se observă că toate curbele de fază care intersectează dreapta L_1 de ecuaţie : $\alpha_1 = \beta_1 I_1 + \theta I_2$, au tangenta verticală în punctul de intersecţie pe cînd curbele de fază care intersectează dreapta L_2, de ecuaţie : $\alpha_2 = \theta I_1 + \beta_2 I_2$, au tangenta orizontală în punctul de intersecţie. Ca urmare se pot construi graficele calitative de evoluţie în planul fazelor, conform metodei lui Lamb [86]. Rezultă concluziile : dacă L_1 şi L_2 nu se intersectează, laserul oscilează pe modul ale cărui cîştig este peste prag ; dacă L_1 şi L_2 se intersectează apar trei situaţii : cuplaj slab al modurilor (laserul oscilează pe două moduri simultan) ; cuplaj tare al modurilor (soluţia corespunde echilibrului instabil, modurile sînt în competiţie şi laserul oscilează pe unul din moduri funcţie de condiţiile iniţiale) ; cuplaj indiferent ($\beta_1 \beta_2 = \theta^2$) al modurilor în care caz dreptele L_1 şi L_2 coincid şi orice punct de pe dreapta $L = L_1 = L_2$ este de echilibru, dar *labil* — adică sistemul este foarte sensibil la perturbaţii.

Rezultatele analizei numerice cu ajutorul calculatorului a competiţiei modurilor în planul fazelor sînt prezentate pentru laserul cu două şi trei moduri în lucrarea [320].

În figura 5.7 se prezintă operarea instabilă a laserului cu două moduri în condiţii de cuplaj tare, astfel încît modul favorizat îl suprimă pe celălalt.

În figura 5.8 se prezintă operarea laserului cu două moduri, pentru cuplaj slab al acestora şi acelaşi coeficient de cîştig pentru moduri.

În figura 5.9 se prezintă operarea laserului cu trei moduri pentru cuplajul slab al acestora.

În figura 5.10 cîştigul şi condiţiile iniţiale determină operarea stabilă cu două moduri a laserului cu trei moduri.

Modul de operare cu un singur mod al laserului cu trei moduri determinat de cîştig şi condiţiile iniţiale este prezentat în figura 5.11.

În figura 5.12, funcţionarea laserului cu trei moduri este instabilă datorită condiţiilor de cuplaj tare.

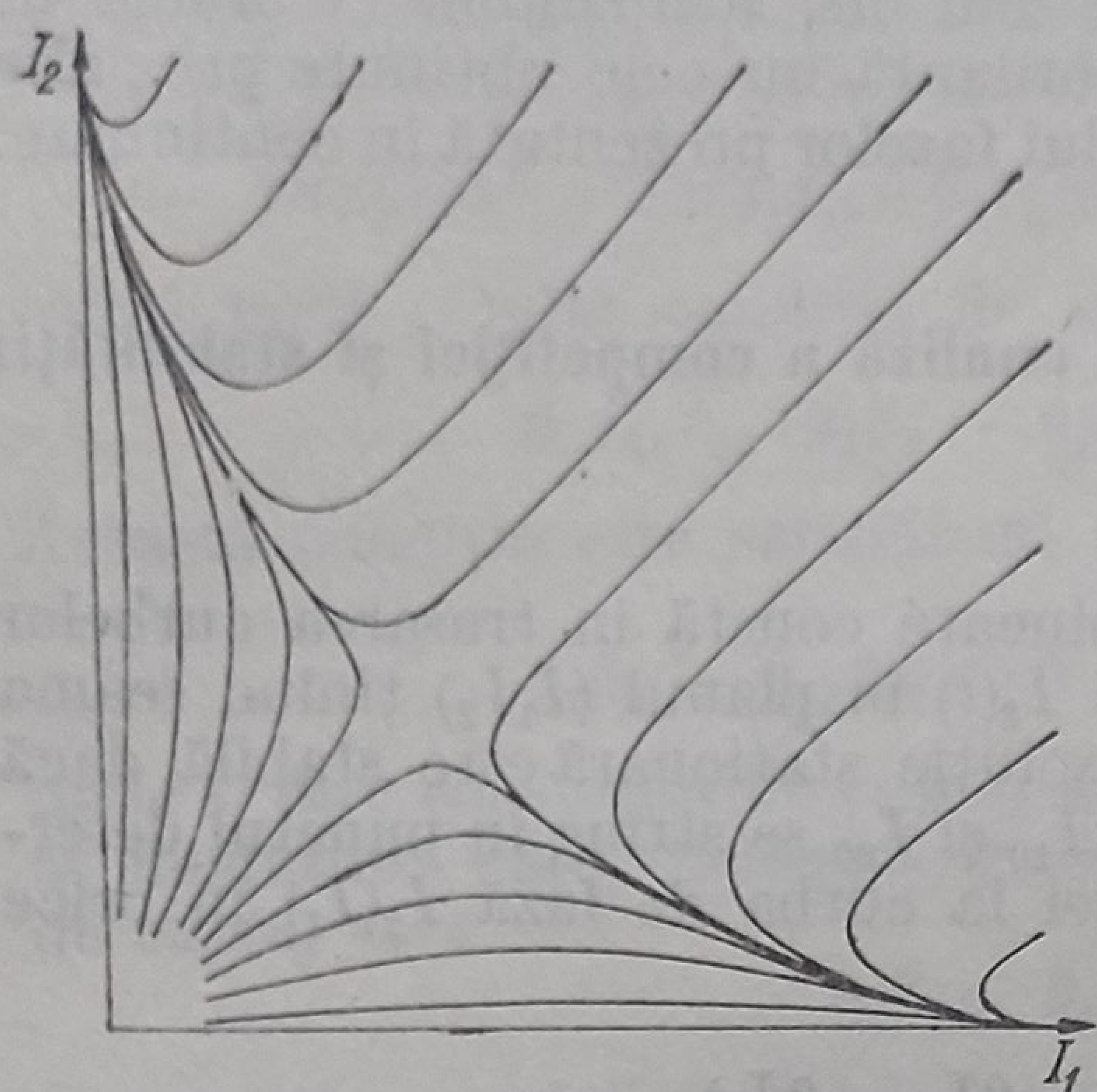


Fig. 5.7

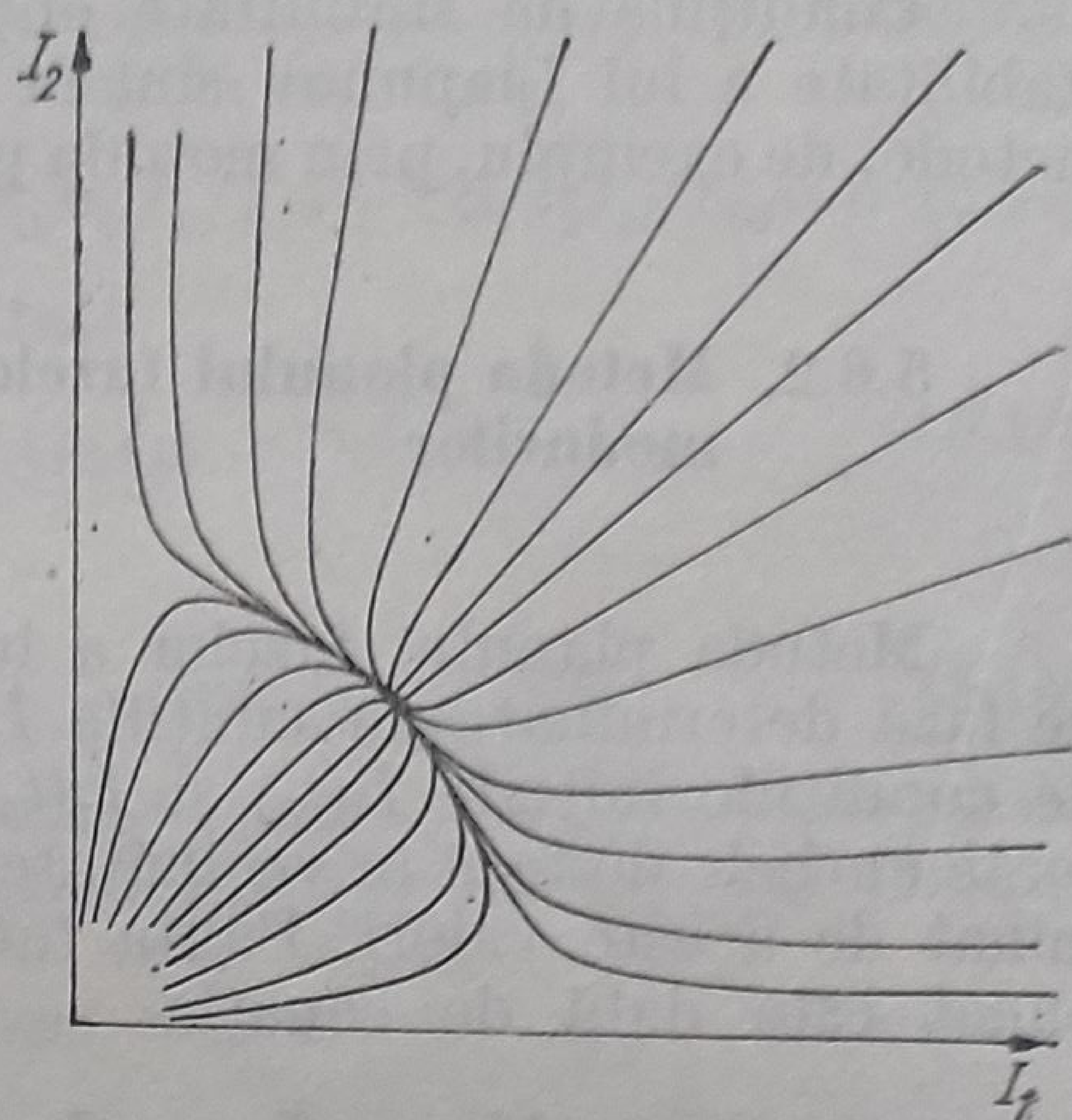


Fig. 5.8

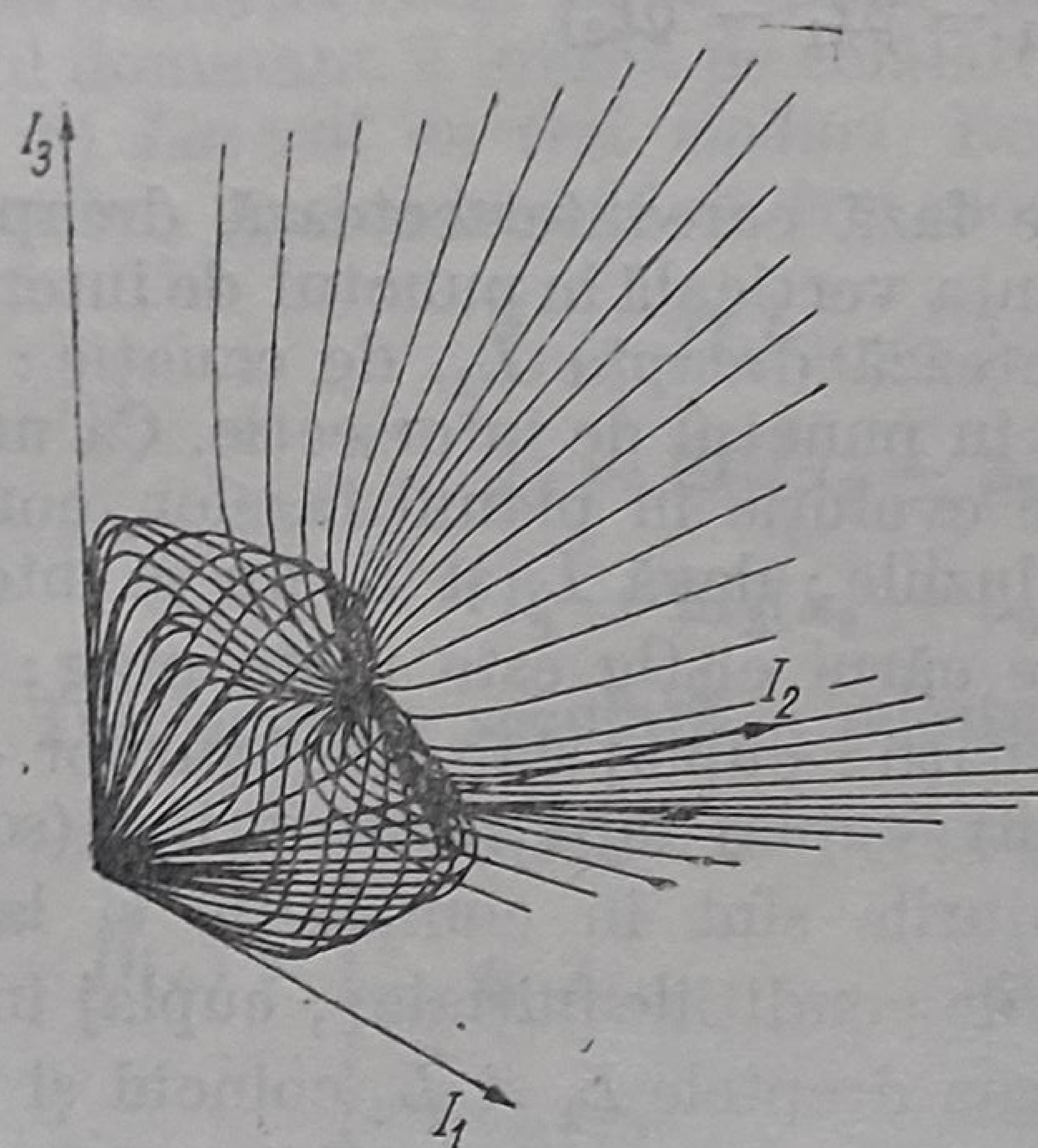


Fig. 5.9

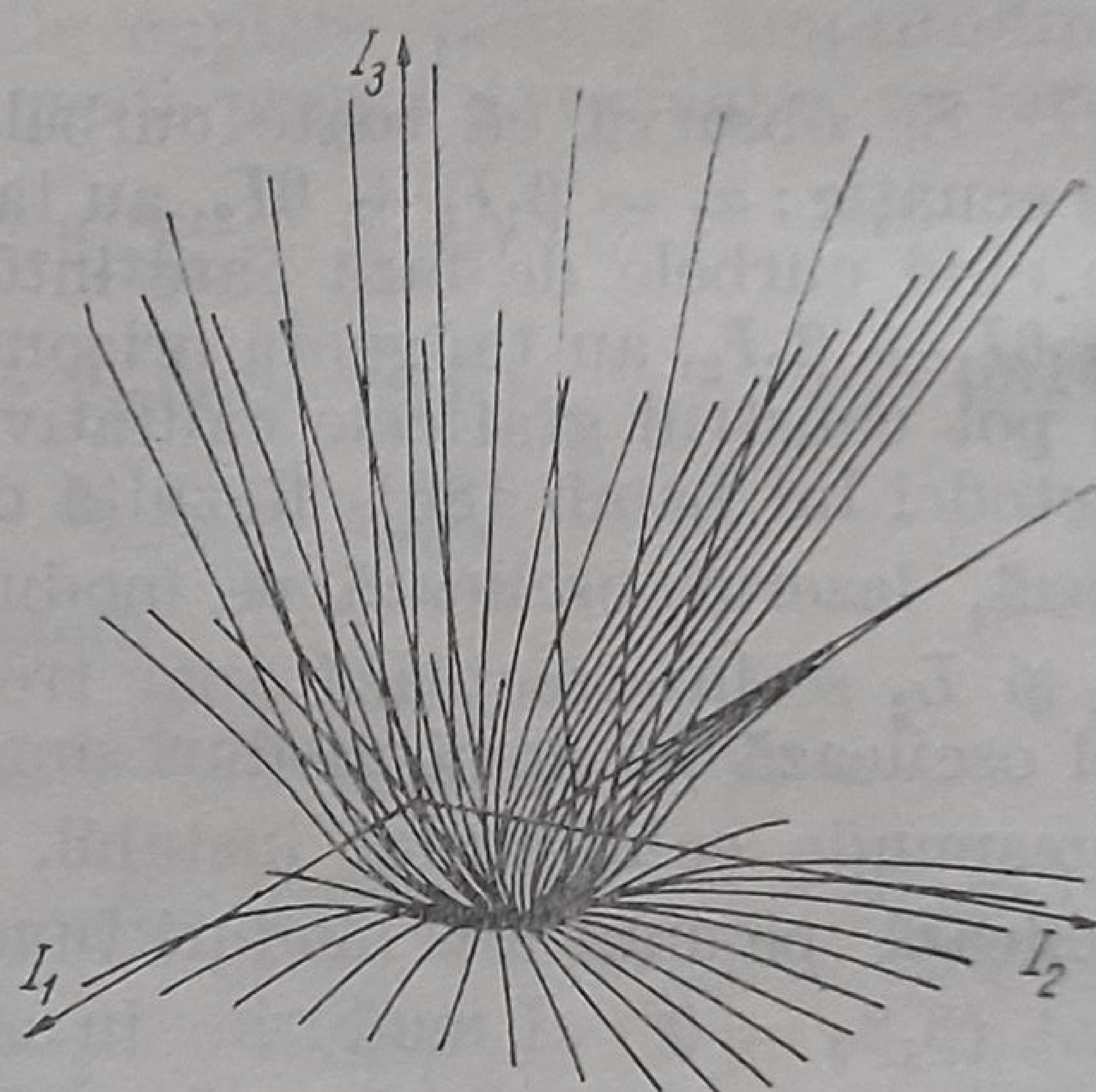


Fig. 5.10

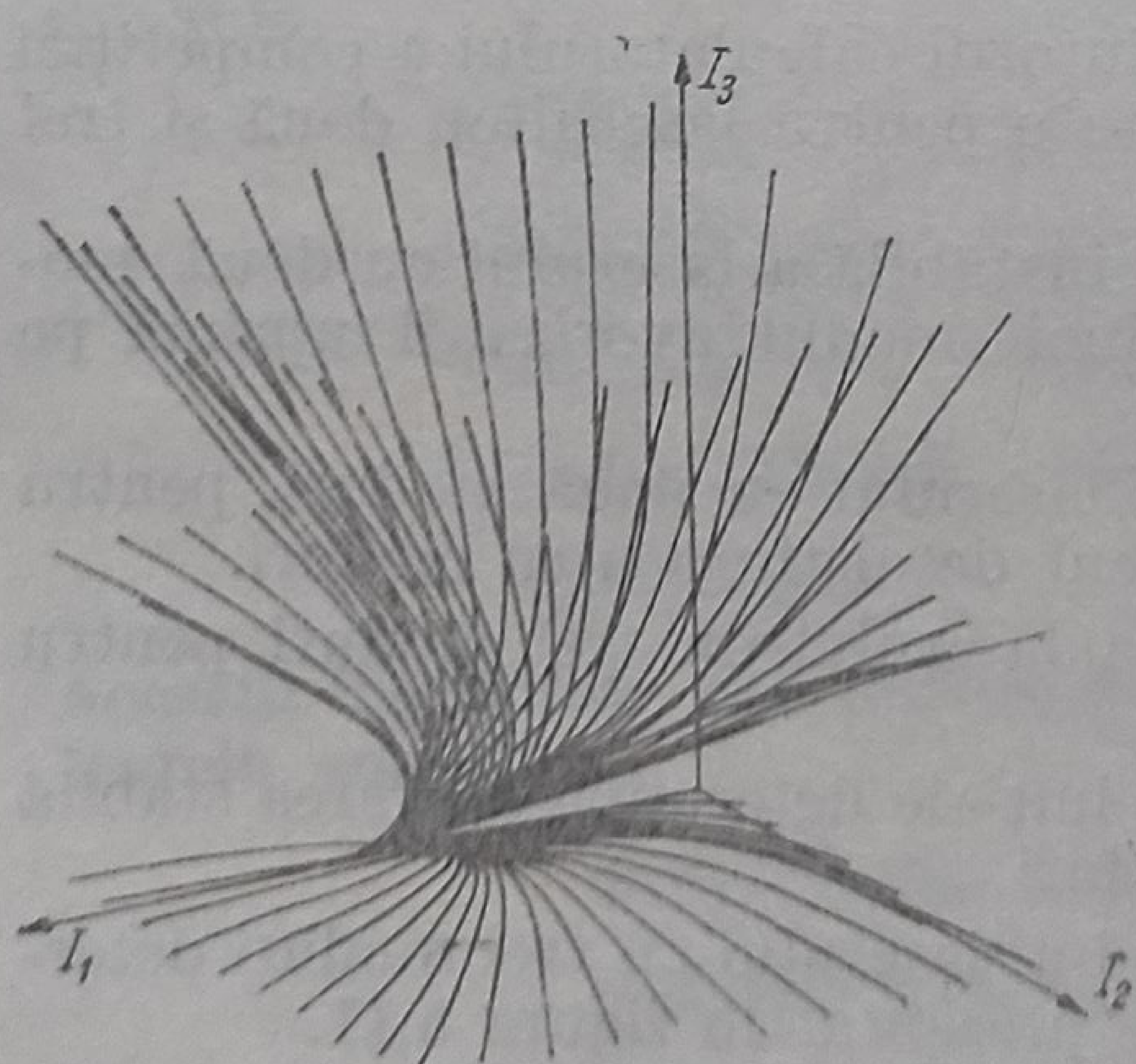


Fig. 5.11

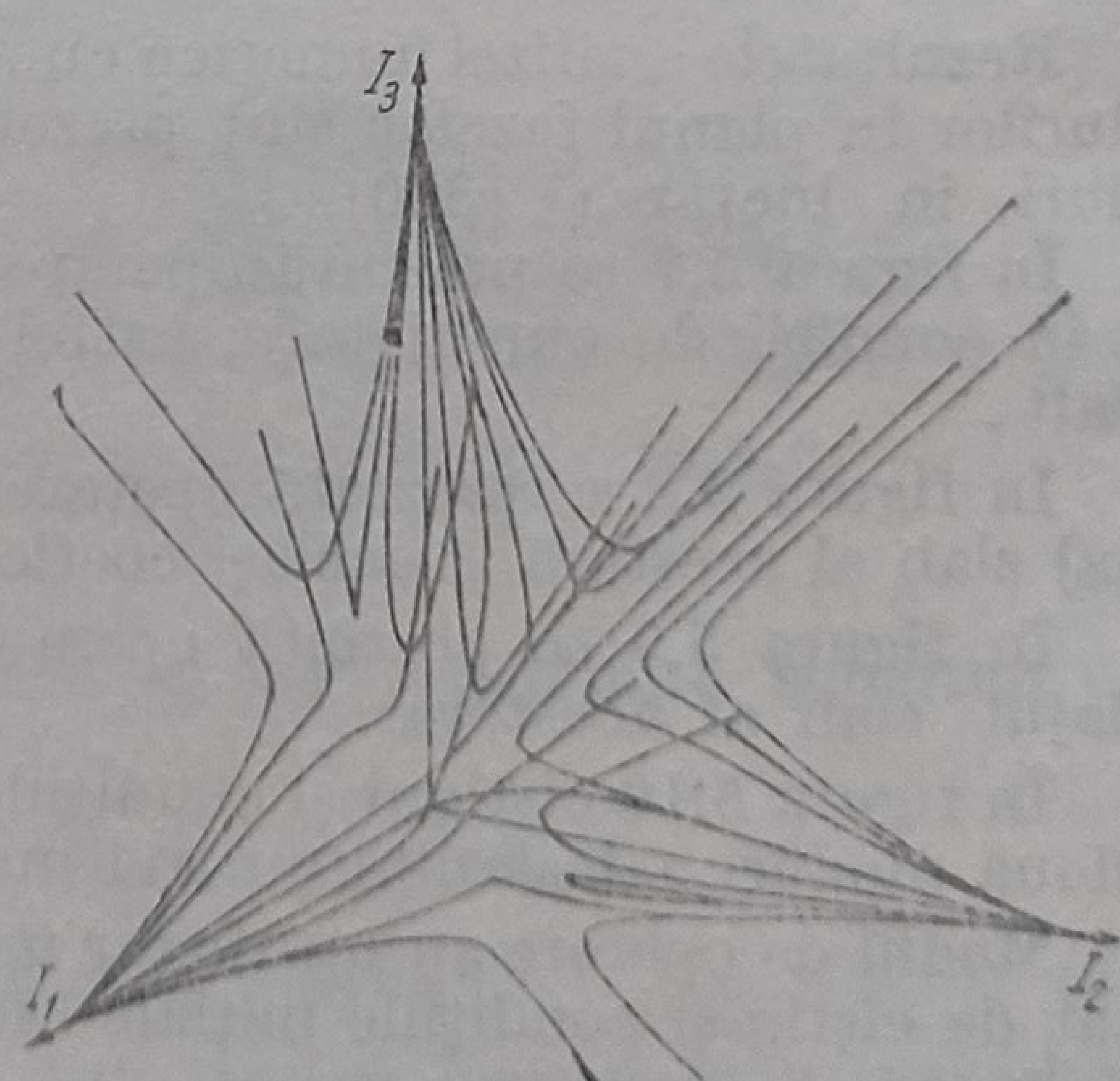


Fig. 5.12

5.7. Sincronizarea modurilor de oscilație

5.7.1. Considerații generale

Intensitatea fasciculului laser emis se modifică în timp necontrolabil ca urmare a variațiilor aleatoare ale amplitudinilor, frecvențelor și fazelor relative ale modurilor, a căror oscilație este afectată de fluctuații și neliniaritățile mediului. Astfel, ecartul dintre modurile de oscilație adiacente nu este în general constant prezentînd abateri de la modurile cavității Fabry-Pérot pasive (egal distanțate).

În consecință, din ecuațiile cuplate ale modurilor rezultă componente ale cîmpurilor cavității avînd frecvențe obținute prin mixarea frecvențelor fundamentale, numite *tonuri combinate* sau *frecvențe combinate*.

De exemplu, în cazul laserului cu trei moduri de oscilație avînd frecvențele ω_1, ω_2 și ω_3 cu $\omega_1 < \omega_2 < \omega_3$ și $\omega_3 - \omega_2 \neq \omega_2 - \omega_1$, apar pe lîngă frecvențele fundamentale nouă frecvențe combinate : $2\omega_1 - \omega_3$, $2\omega_1 - \omega_2$, $\omega_1 + \omega_2 - \omega_3$, ... Efectul acestor frecvențe combinate se manifestă sub forma unor pulsații (fluctuații) ale diferenței de populație și polarizării induse.

Continuînd raționamentul pot fi considerate frecvențele combinate succesive ale acestor nouă frecvențe combinate astfel încît se poate admite că există un număr infinit de moduri de oscilație slabe, care deși nu oscilează prin ele însele (nu îndeplinesc condția de prag) își manifestă prezența în caracteristicile semnalului emis.

Dacă printr-un procedeu oarecare modurile de oscilație propriu-zise sînt forțate să păstreze un ecart de frecvență constant între ele, cu o diferență de fază relativă fixă, atunci intensitatea fasciculului laser emis va avea o evoluție temporară bine definită, regimul corespunzător de lucru fiind denumit cu *modurile de oscilație sincronizate* sau „*mode-locking*".

Pot fi sincronizate atît modurile de oscilație transversale cît și cele longitudinale ale laserului, prin sincronizare producîndu-se modulația temporală (sincronizarea modurilor longitudinale) sau spațială (sincronizarea modurilor transversale) a fasciculului emis de laser. Cuplarea modurilor de oscilație poate fi privită ca un fenomen al opticii neliniare datorat neliniarităților sistemului cîmp-substanță, astfel încît funcție de modul de apariție și manifestare a neliniarităților se cunosc mai multe tipuri de mode-locking. Modurile longitudinale se pot sincroniza prin intermediul neliniarităților mediului activ sau pierderilor cavității (autosincronizare), cu ajutorul elementelor parametrice, prin introducerea în cavitate a unui element modulator comandat din exterior, cu ajutorul unor elemente neliniare plasate în cavități care au o caracteristică de amplificare funcție de amplitudine, cum ar fi absorbanții saturabili, prin varierea lungimii cavității etc. Sincronizarea modurilor de oscilație transversale se obține, în general, prin aceleași metode, încît de cele mai multe ori rezultă o cuplare mixtă a modurilor de oscilație.

Dacă sincronizarea modurilor se face cu ajutorul unui semnal exterior aplicat pe dispozitivul neliniar, regimul de operare se numește *mode-locking forțat* (activ). Atunci cînd sincronizarea modurilor este posibilă în absența oricărui semnal exterior se obține regimul de *mode-locking pasiv*. În sfîrșit, dacă mediul laser acționează ca element neliniar, se obține

regimul de *autosincronizce* (self-locking). Spre deosebire de autosincronizare, sincronizarea pasivă implică prezența unui element neliniar exterior.

Prin cuplarea a $(2M + 1)$ moduri longitudinale de frecvențe

$$\omega_m = \omega_0 + m\Delta\omega \tag{5.149}$$

unde $\Delta\omega = \frac{\pi c}{L}$ reprezintă ecartul în frecvență constant dintre două moduri de oscilație adiacente, presupuse de amplitudini și faze egale, se obține o undă

$$\mathbf{E}_c = \mathbf{E}_0 \sum_{m=-M}^{M} \exp\,[\mathrm{i}(\omega_0 + m\Delta\omega)t] \tag{5.150}$$

de frecvență ω_0, modulată în amplitudine

$$\mathbf{E}_c = \mathbf{E}_0 \exp\,[\mathrm{i}\omega_0 t] \frac{\sin\left[\left(M + \frac{1}{2}\right)\Delta\omega t\right]}{\sin\left(\frac{1}{2}\Delta\omega t\right)}. \tag{5.151}$$

(S-a presupus pentru simplificare că cele $2M + 1$ moduri care se sincronizează au aceeași amplitudine și aceeași fază).

Variația în timp a intensității laser, determinată de expresia

$$I(t) = E_0^2 \frac{\sin^2\left[\left(M + \frac{1}{2}\right)\Delta\omega t\right]}{\sin^2\left(\frac{\Delta\omega t}{2}\right)} \tag{5.152}$$

este reprezentată grafic în figura 5.13.

Se constată că $I(t)$ prezintă maxime principale de înălțime $(2M + 1)^2 E_0^2$ cu o lărgime a impulsului $\tau' = T/2M + 1$ și un interval de repetiție $T = \frac{2\pi}{\Delta\omega}$.

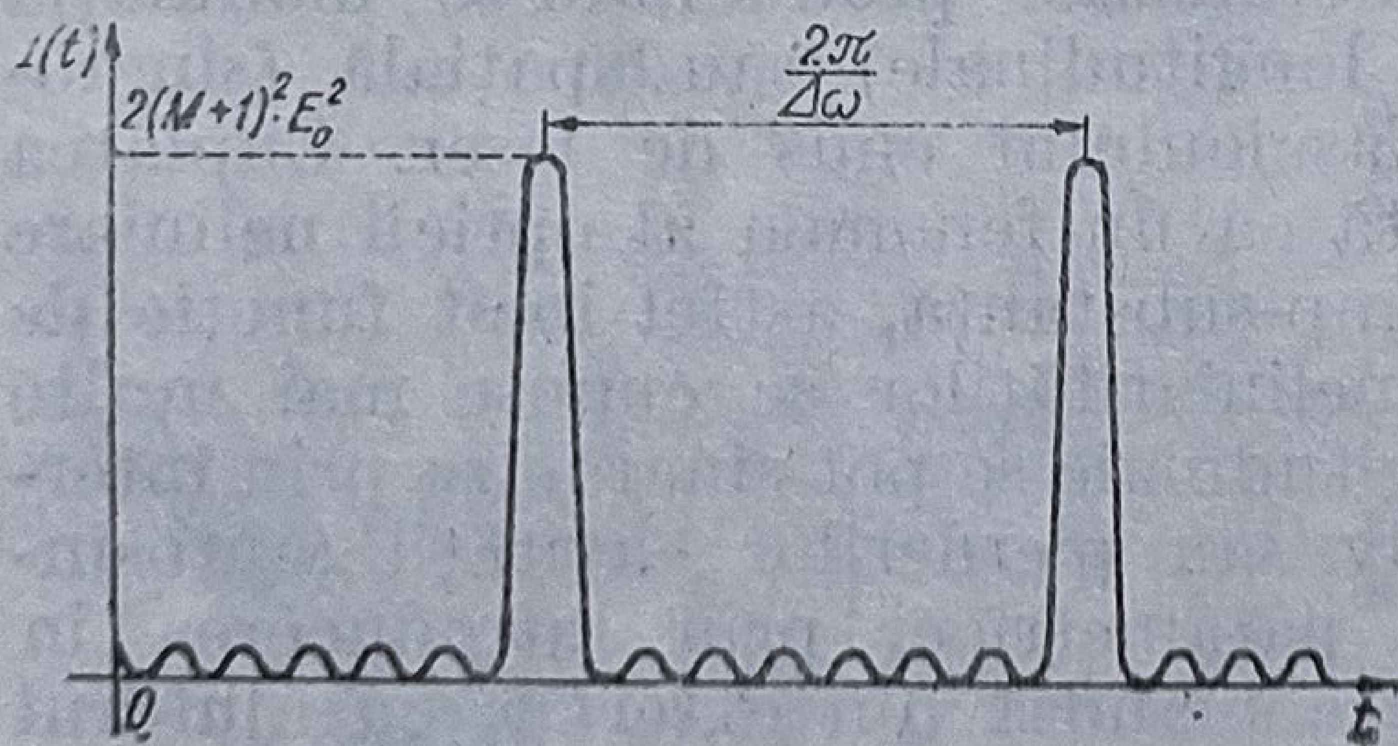


Fig. 5.13

Prin urmare, în urma sincronizării modurilor de oscilație longitudinale se obține un semnal sub forma unor impulsuri optice ultrascurte, care se mișcă în cavitate de la o oglindă la alta cu viteza c/n.

Cuplarea mai multor moduri transversale conduce la un fascicul gaussian, de lărgime constantă, ce se deplasează periodic după coordonatele transversale, realizînd excursii spațiale care ating valori ce reprezintă dimensiunea fasciculului multiplicată cu numărul modurilor transversale cuplate. După cum se cuplează modurile transversale după o singură direcție sau după ambele direcții, baleiajul obținut poate fi liniar sau eliptic. Obținerea impulsurilor optice, în cazul sincronizării modurilor transversale, este legată de poziția spațială a detectorului care primește

semnal numai în anumite momente în timpul baleiajului spațial al fasciculului laser.

Rezultatele mai importante privind sincronizarea modurilor de oscilație ale laserilor au fost pubicate începînd din anul 1964. În prezent se cunosc mai multe formalisme generale de tratare a operării mode-locking, dintre care remarcăm : teoria modurilor cuplate [305, 306], analiza în domeniul timp [307], analiza în domeniul frecvență [308], analiza pe baza circuitelor echivalente [309] etc.

În cele ce urmează se prezintă cîteva caracteristici generale de diferitelor tipuri de mode-locking, evidențiindu-se particularitățile specifice de producere și modelare.

5.7.2. Sincronizarea activă a modurilor de oscilație

Pentru prima dată, sincronizarea modurilor de oscilație forțată, utilizîndu-se un modulator intern, a fost realizată de Hargrove și alții [310]. Aceștia au utilizat un modulator acusto-optic excitat cu un semnal avînd frecvența egală cu ecartul dintre modurile longitudinale ale unui laser cu heliu-neon, în cavitatea căruia era plasat modulatorul. Tratarea analitică a modulației interne de pierderi a fost raportată în anul 1964 de Di Domenico [312]. Ulterior, Harris și Targ au demonstrat experimental sincronizarea modurilor de oscilație cu ajutorul unei perturbații de fază internă, tratarea analitică a acestui tip de modulație datorîndu-se lui Yariv, Harris și Targ [311]. Schema generală a unei configurații de modulație internă activă este reprezentată în fig. 5.14.

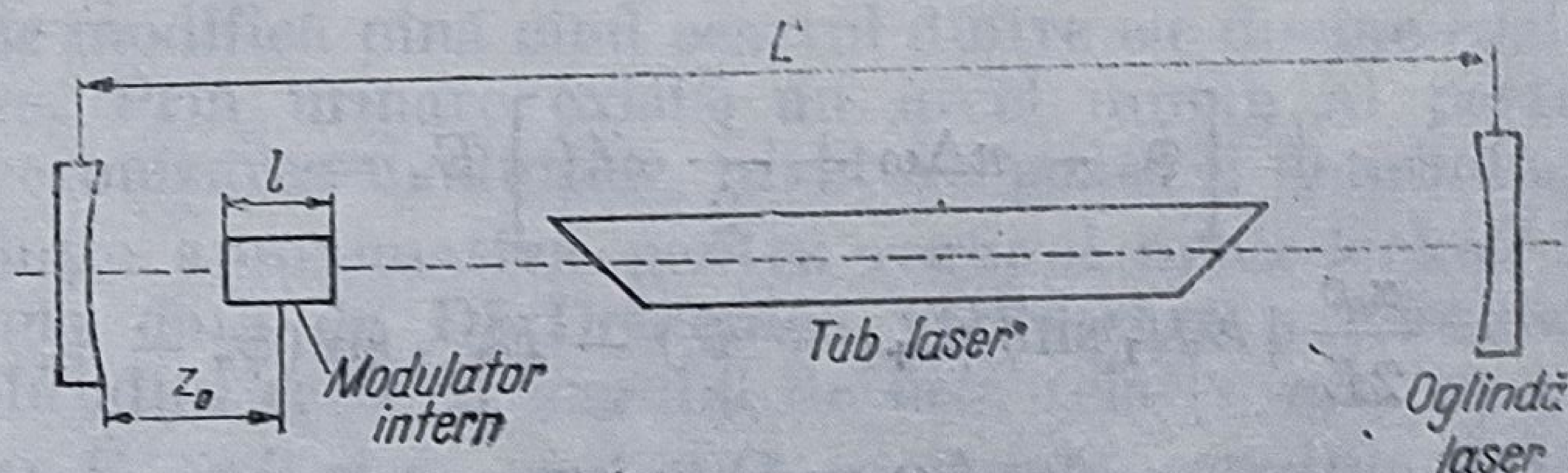


Fig. 5.14

Numeroase experimente de mode-locking activ, efectuate ulterior, se referă la diferite sisteme laser, la diferite tipuri de modulatori acusto-optici sau electrooptici, la diferite tehnici utilizate etc.

a) *Modulația de amplitudine.* Din punct de vedere fenomenologic, prin modularea pierderilor cavității cu un semnal avînd frecvența $\omega = \pi c/L$, lumină incidentă pe dispozitivul modulator poziționat, de exemplu, lîngă una din oglinzile cavității va trece prin modulator de fiecare dată (după reflexii succesive) în momentul cînd acesta prezintă aceleași pierderi. Întrucît există momente (periodice) cînd pierderile modulatorului sînt egale cu zero, lumina care trece prin modulator succesiv în aceste momente va da naștere la impulsuri, a căror lărgime este determinată de inversul benzii de cîștig și a căror perioadă este egală cu timpul de tranzit dus-întors prin cavitate.

Studiul sincronizării modurilor de oscilație prin modulația pierderilor, cavității laser se poate face cu ajutorul ecuațiilor cuplate ale modurilor elaborate de Lamb [86].

Dacă perturbaţia de pierderi este reprezentată cu ajutorul susceptibilităţii electrice $\Delta\chi''(z, t)$ sub forma

$$\Delta\chi''(z, t) = \Delta\chi''(z)(1 + \cos\omega_m t) \quad (5.153)$$

unde frecvenţa de modulaţie $\omega_m \simeq \Delta\Omega$, $\Delta\Omega$ fiind ecartul de frecvenţă dintre modurile cavităţii pasive, se pot defini coeficienţii de *autocuplaj* α_a

$$\alpha_a = \frac{2\nu}{c}\int_0^L \Delta\chi''(z)\, U_n^2(z)\, dz \quad (5.154)$$

şi de *cuplaj mutual* α_c

$$\alpha_c = \frac{\nu}{c}\int_0^L \Delta\chi''(z)\, U_{n\pm 1}(z)\, U_n(z)\, dz. \quad (5.155)$$

ai modurilor de oscilaţie, care descriu cuplajul modurilor prin intermediul componentei parametrice a polarizării

În continuare, dacă se ia în considerare la evaluarea polarizării şi contribuţia mediului atomic prin componentele în fază şi în cvadratură χ_n' respectiv χ_n'', ecuaţiile de mişcare selfconsistente pentru amplitudinile şi frecvenţele modurilor cuplate se scriu sub forma [306]

$$\dot{E}_n + \frac{\omega}{2}\left[\frac{1}{Q_n} + \chi_n''\right]E_n = -\frac{\alpha_a c}{2L}E_n - \frac{\alpha_c c}{2L}[E_{n+1}\cos(\varphi_{n+1} - \varphi_n) + E_{n-1}\cos(\varphi_n - \varphi_{n-1})] \quad (5.156)$$

respectiv

$$\left[\dot{\varphi}_n - n\Delta\omega + \frac{1}{2}\omega\chi_n'\right]E_n = \frac{\alpha_c c}{2L}[E_{n+1}\sin(\varphi_{n+1} - \varphi_n) - E_{n-1}\sin(\varphi_n - \varphi_{n-1})] \quad (5.157)$$

unde

$$n\Delta\omega = \Omega_n - \omega_n. \quad (5.158)$$

Pentru analiza care urmează este util să se definească parametrii

$$G_n = -\frac{\omega L}{c}\chi_n'' = g_n(1 - \beta E_n^3) \quad (5.159)$$

$$\psi_n = \frac{\omega L}{c}\chi_n' = g_0\frac{Z_r\left(\dfrac{\omega_n - \omega}{Ku}\right)}{Z_i(0)} \quad (5.160)$$

$$\alpha_n = \frac{\omega L}{c}\frac{1}{Q_n} \quad (5.161)$$

$$\alpha(t) = \frac{\omega l}{c}\Delta\chi''(1 + \cos\omega_m t) \quad (5.162)$$

unde G_n este cîştigul de semnal mic saturat pe tranzit, g_n este cîştigul nesaturat pe tranzit pentru modul n, β este parametrul de saturaţie, ψ_n este retardarea dublu tranzit pentru modul n datorită mediului

activ, g_0 este cîștigul nesaturat pentru linia centrală, α_n descrie pierderile pe tranzit datorită disipării și transmisiei oglinzilor, iar $\alpha(t)$ descrie pierderile pe tranzit datorită elementului perturbator considerat de lungime l.

Evaluarea coeficienților α_a și α_c se poate face funcție de distanța z_0 a elementului perturbator în raport cu una dintre oglinzile cavității sub forma

$$\alpha_a \simeq \frac{\omega l}{c} \Delta\chi'' \tag{5.163}$$

respectiv

$$\alpha_c \simeq \frac{\alpha_0}{2} \cos \frac{z_0 \pi}{L}. \tag{5.164}$$

(Pentru $z_0 = 0$, $\alpha_c \simeq \dfrac{\alpha_a}{2}$, unde α_a descrie astfel pierderile pe trecere datorită perturbației, iar $\alpha_n \simeq \alpha$, pierderile fiind presupuse independente de n).

Rezolvarea ecuațiilor (5.156) și (5.157) se poate face numeric sau analitic utilizîndu-se metode aproximative.

La valori scăuzte ale semnalului exterior, termenul parametric din partea dreaptă a ecuației (5.156) este neglijabil și amplitudinile modurilor sînt cele ale laserului în absența perturbației. Cu toate acestea, nu se poate obține o soluție de regim staționar a ecuației (5.157) în care să se neglijeze efectul perturbației datorită dependenței neliniare a lui χ_n' de n. Ca urmare, în absența perturbației modurile oscilează liber, frecvențele modurilor fiind inegal distanțate. În prezența perturbației frecvența modurilor se modifică pînă cînd ecartul dintre ele devine egal cu frecvența modulatoare. Prin urmare, există un nivel minim al perturbației care produce sincronizarea modurilor, nivel ce poate fi determinat.

O soluție aproximativă pentru regimul mode-locked a fost găsită pentru prima dată de Di Domenico [312] care a considerat modurile avînd amplitudini egale și unghiul de fază relativ egal cu π.

Pentru $\dot{E}_n = 0$ și $\dot{\varphi}_n$ egal cu o constantă, ecuațiile (5.156) și (5.157) conduc la relațiile

$$E_{n+1} \sin(\varphi_{n+1} - \varphi_n) - E_{n-1} \sin(\varphi_n - \varphi_{n-1}) = = -E_n \left[\dot{\varphi} \frac{2L}{c\alpha_c} - n\,\Delta\omega \frac{2L}{c\alpha_c} + \frac{\psi_n}{\alpha_c} \right] \tag{5.165}$$

$$E_{n+1} \cos(\varphi_{n+1} - \varphi_n) + E_{n-1} \cos(\varphi_n - \varphi_{n-1}) = E_n \left[\frac{G_n - \alpha - \alpha_a}{\alpha_c} \right]. \tag{5.166}$$

Pentru $\Delta\omega = \psi_n = 0$ și $G_n =$ const. aceste ecuații admit soluția

$$E_n = E_0$$
$$\varphi_n - \varphi_{n-1} = 0 \text{ (arbitrar)} \tag{5.167}$$
$$\dot{\varphi} = 0$$

E_0 putînd fi determinat ca soluție a ecuației

$$G_n - \alpha = \alpha_a + 2\alpha_c \cos \theta. \tag{5.168}$$

Soluția de mai sus corespunde ecuațiilor liniarizate (includerea neliniarităților îl fixează pe $\theta = \pi$) pentru un număr infinit de moduri cu același cîștig (pentru un număr finit de moduri rezultă amplitudini diferite pentru moduri).

Variația intensității impulsurilor cu nivelul perturbației precum și variația lărgimii impulsurilor cu nivelul perturbației la defazaj constant sînt arătate calitativ în fig. 5.15 (*a* și *b*).

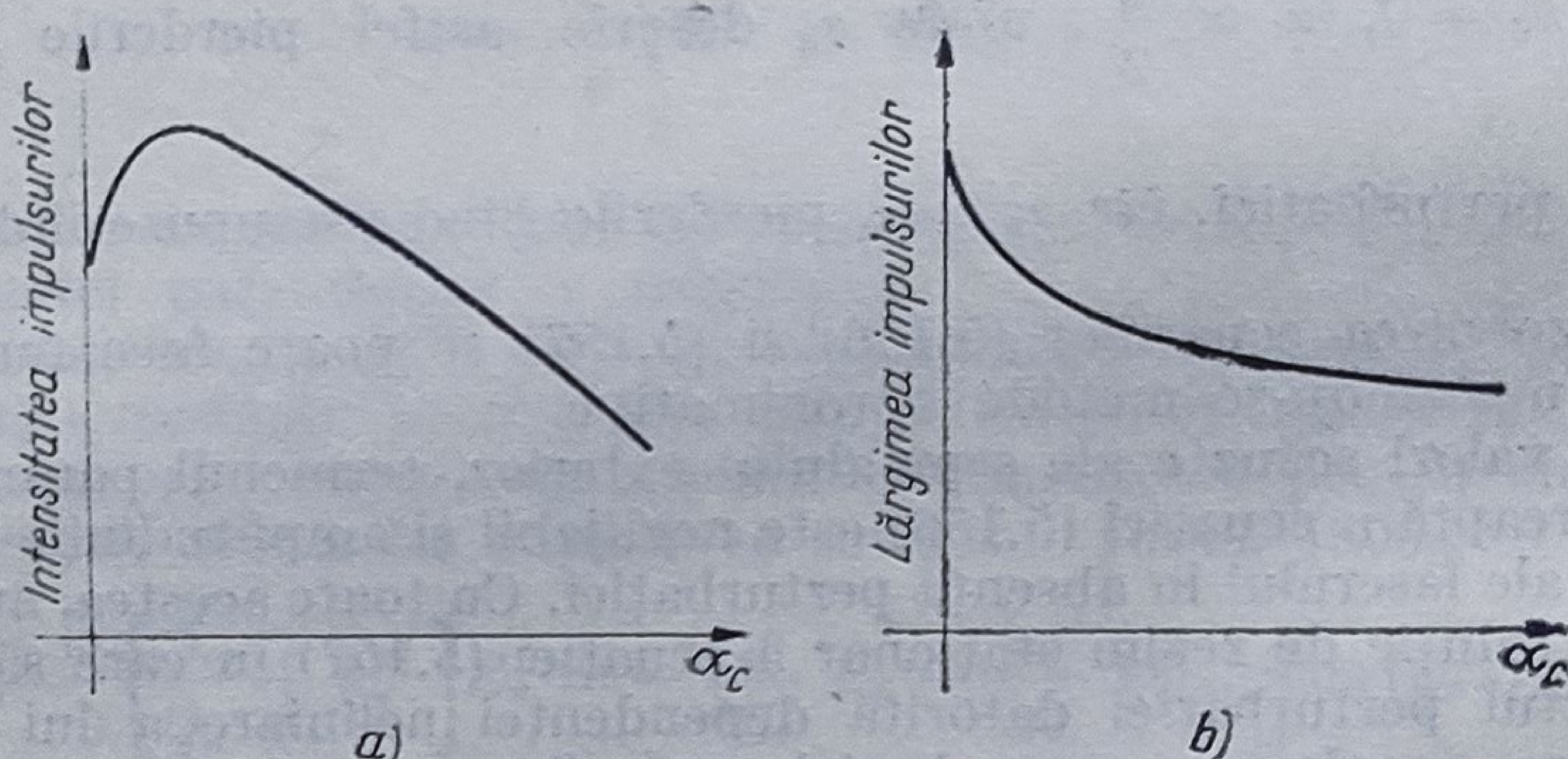


Fig. 5.15.

Dacă unghiul relativ de fază $\varphi_n - \varphi_{n-1}$ diferă puțin de π, amplitudinile și fazele modurilor pot fi obținute printr-o metodă de iterație, în mai multe trepte, pînă cînd se obține o convergență a valorilor E_n și $\varphi_n - \varphi_{n-1}$.

În lucrările [63, 64, 65, 66, 70] se face un studiu sistematic al unor noi tipuri de modulatori acusto-optici utilizați de autori în experimente de mode-locking activ. Un astfel de modulator este modulatorul cu incidență Brewster, analog unei cavități Fabry-Pérot, utilizat cu bune rezultate în experimentele de mode-locking ale unui laser cu He-Ne.

b) *Modulația de frecvență.* Din punct de vedere fenomenologic lumina care trece printr-un modulator de fază (electrooptic) plasat în cavitatea laser și excitat cu un semnal avînd frecvența egală cu ecartul dintre moduri va suferi o schimbare de fază într-un sens sau altul, în afara unor momente bine precizate cînd această schimbare de fază este nulă. Lumina care trece prin modulator (periodic) în aceste momente va da naștere la impulsuri ca și în cazul modulației de pierderi.

Studiul sincronizării modurilor de oscilație prin modulație internă de fază se poate face prin analogie cu studiul modulației de amplitudine, utilizîndu-se ecuațiile cuplate ale modurilor [86]. Astfel dacă perturbația de fază este reprezentată prin intermediul susceptibilității electrice $\Delta\chi'(z, t)$ sub forma

$$\Delta\chi'(z, t) = \Delta\chi'(z) \cos \omega_m t \tag{5.169}$$

unde ω_m este frecvenţa perturbaţiei ($\omega_m \simeq \Delta\Omega$), se poate defini coeficientul de cuplaj între modurile adiacente

$$\delta = \frac{\omega}{c}\int_0^L \Delta\chi'(z)\, U_{n\pm1}(z) U_n(z)\, dz =$$

$$= \frac{1}{2}\frac{\omega}{c}\int_0^L \Delta\chi'(z) \cos\frac{\pi z}{L}\, dz, \quad (5.170)$$

ultima egalitate fiind obţinută în ipoteza unei variaţii lente a lui $\Delta\chi'(z)$ în comparaţie cu cea a lui $U_n(z)$.

Ca şi în cazul modulaţiei de amplitudine, efectul inversiei atomice se ia în considerare prin contribuţiile în faza χ_n' şi în cuadratură χ_n'' ale susceptibilităţii astfel încît ecuaţiile selfconsistente pentru amplitudinile şi frecvenţele modurilor se scriu în acest caz sub forma [305]

$$\dot{E}_n + \frac{1}{2}\omega\left[\frac{1}{Q_n} + \chi_n''\right] E_n =$$

$$= \frac{\delta c}{2L}\left[E_{n+} \sin(\varphi_{n+1} - \varphi_n) - E_{n-1} \sin(\varphi_n - \varphi_{n-1})\right] \quad (5.171)$$

$$\left[\dot{\varphi}_n - n\Delta\omega + \frac{1}{2}\omega\chi_n'\right] E_n =$$

$$= \frac{\delta c}{2L}\left[E_{n+1} \cos(\varphi_{n+1} - \varphi_n) + E_{n-1} \cos(\varphi_n - \varphi_{n-1})\right] \quad (5.172)$$

Dacă se admite $\Delta\chi'$ independent de z pe lungimea modulatorului $l(l \ll L)$, plasat la distanţa z_0 de una dintre oglinzile cavităţii, se obţine pentru δ expresia

$$\delta = \frac{L}{l}\frac{2}{\pi}\left(\sin\frac{l}{L}\frac{\pi}{2}\right)\left(\cos\frac{z_0\pi}{L}\right)\delta_m \simeq \delta_m \cos\left(\frac{\pi z_0}{L}\right) \quad (5.173)$$

unde

$$\delta_m = \frac{\Delta\chi' l\omega}{2c} \quad (5.174)$$

este retardarea maximă de fază pe tranzit datorită elementului perturbator. Pentru $z_0 = 0$, $\delta \simeq \delta_m$. În continuare se caută soluţiile ecuaţiilor (5.171) şi (5.172) pentru $\dot{E}_n = 0$, $\dot{\varphi}$ constant şi independent de n, $\chi_n'' = -\frac{1}{Q_n}$ şi independent de E_n, se neglijează neliniarităţile şi se admite $\chi_n' = 0$. Se obţin ecuaţiile

$$0 = \frac{\delta c}{2L}\left[E_{n+1} \sin(\varphi_{n+1} - \varphi_n) - E_{n-1} \sin(\varphi_n - \varphi_{n-1})\right] \quad (5.175)$$

$$[\dot{\varphi} - n\Delta\omega] E_n = -\frac{\delta c}{2L}\left[E_{n+1} \cos(\varphi_{n+1} - \varphi_n) + E_{n-1} \cos(\varphi_n - \varphi_{n-1})\right], \quad (5.176)$$

ale căror soluţii au forma

$$\dot{\varphi}_n = q\Delta\omega$$

$$\varphi_{n+1} - \varphi_n = 0 \tag{5.177}$$

$$E_n = J_{n-q}(\Gamma)$$

unde q este un întreg, J_{n-q} este funcţia Bessel de ordinul $n - q$, iar

$$\Gamma = \frac{c}{L}\frac{1}{\Delta\omega}\delta = \frac{1}{\pi}\frac{\Delta\Omega}{\Delta\omega}\delta. \tag{5.178}$$

Pentru $q = 0$, soluţia (5.177) descrie o oscilaţie modulată în frecvenţa cu indicele de modulaţie Γ şi cu frecvenţa de centru în poziţia modului central. (Se observă că $\Gamma \sim \delta$ şi $\Gamma \sim \Delta\overline{\omega}^{1}$). Fiecare dintre modurile de oscilaţie libere poate deveni purtătoare a unei oscilaţii modulate în frecvenţă. De exemplu, dacă modul q devine purtătoare, atunci amplitudinea sa $J_0(\Gamma)$ va fi singura componentă a acestei oscilaţii MF care va avea frecvenţa de oscilaţie egală cu cea a unui mod axial.

Pentru $\Delta\omega \to 0$ ($\Gamma \to \infty$) soluţiile ecuaţiilor (5.175) şi (5.176) devin

$$E_n = E_{n+1}$$

$$\varphi_{n+1} - \varphi_n = p\pi \tag{5.179}$$

$$\dot{\varphi}_n = (-1)^{p+1}\frac{\delta c}{L} (= -1)^{p+1}\frac{\delta}{\pi}\Delta\Omega.$$

Aceste soluţii corespund în domeniul timp unei serii repetitive de impulsuri în concordanţă cu observaţiile experimentale. Se poate arăta că în cazul oscilaţiilor pe mai multe moduri apare o competiţie între diferitele oscilaţii *MF* centrate la diferite moduri axiale însă oscilaţia avînd purtătoarea poziţionată în centrul liniei atomice este, în general, dominantă. Rezultă că laserul modulat în frecvenţă posedă mai multe regimuri de lucru distincte, care pot fi evidenţiate cu ajutorul caracteristicilor spectrale diferite la ieşire. Pentru valori mici ale indicelui de modulaţie, competiţia între oscilaţiile modulate în frecvenţă este slabă şi laserul poate fi considerat că oscilează cu modurile libere. Competiţia între diferite oscilaţii *MF* creşte odată cu creşterea perturbaţiei obţinîndu-se treptat un regim de lucru *MF* tipic. Prin creşterea în continuare a lui Γ se obţine un al doilea regim de lucru tipic, cu mai multe oscilaţii modulate în frecvenţe puternic cuplate între ele, ce face trecerea spre regimul de lucru mode-locking care poate fi considerat un regim *MF* puternic distorsionat. Dependenţa de nivelul perturbaţiei a intensităţii şi lărgimii impulsurilor obţinute prin modulaţie de frecvenţă este asemănătoare cu prezentată în fig. 5.15 pentru modulaţia de amplitudine.

Un model matematic privind evaluarea numărului de moduri cuplate, pentru laserii *MF* mode-locked este prezentat în lucrarea [313].

În aproximaţia liniară, numărul modurilor cuplate este obţinut din analiza oscilaţiei *MF*, pentru valori mari ale lui Γ.

În cazul general al considerării neliniarităţilor, numărul modurilor cuplate este limitat de condiţia generală

$$0 < \frac{1}{\delta}(\rho_n + \rho_{n+1} + \ldots + \rho_{n-m+1}) \leq 1 \qquad (5.180)$$

unde ρ_n reprezintă cîştigul net saturat pe tranzit

$$\rho_n = \frac{\omega L}{c}\left[\frac{1}{Q_n} + \chi_n''\right]. \qquad (5.181)$$

Experimente recente de mode-locking de tip *MF* sînt prezentate în lucrările [314, 315, 316] şi se referă la studiul diferitelor regimuri de lucru ale laserilor cu gaz (He-Ne), cu modulaţie internă de fază, utilizîndu-se cristale modulatoare electrooptice plasate în cavitatea laser activă sau într-o cavitate cuplată cu cea activă. Plasarea modulatorului într-o cavitate externă, cuplată cu cea laser prezintă o serie de avantaje, printre care neperturbarea cîştigului cavităţii active este esenţială în special în cazul laserilor cu cîştig mic cum sînt cei cu He-Ne.

Configuraţia experimentală generală utilizată este prezentată în figura 5.16.

A fost studiată experimental dependenţa regimului de mode-locking de o serie de parametri: tensiunea aplicată cristalului modulator, frec-

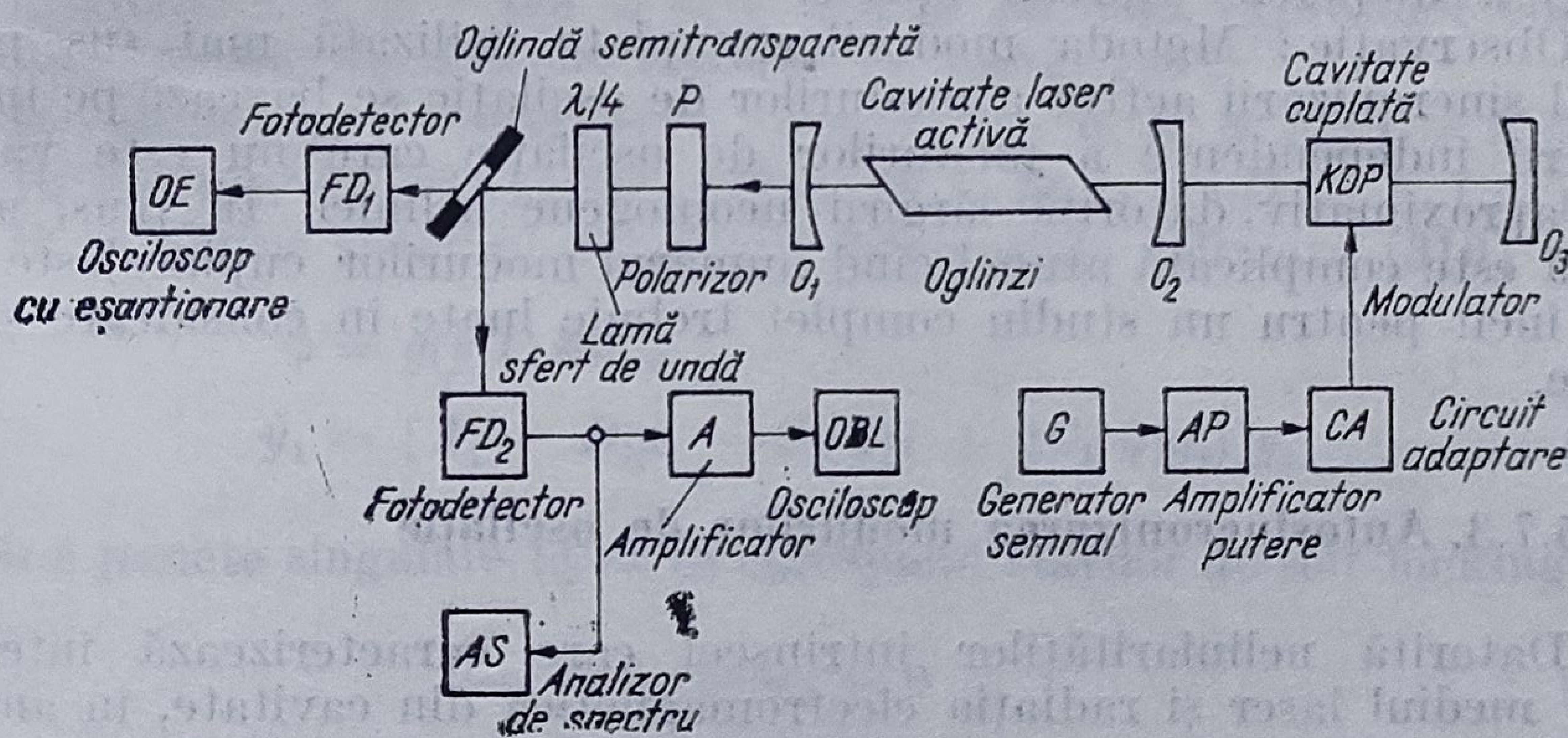


Fig. 5.16

venţa semnalului de excitaţie, lungimea cavităţii cuplate, deviaţiile permise ale lungimii cavităţii cuplate în raport cu cea activă etc. Metoda a fost aplicată pentru realizarea unui generator de impulsuri cu durate de subnanosecunde, pentru testarea timpului de răspuns al dispozitivelor optoelectronice.

Un alt tip de experimente de mode-locking se referă la sincronizarea modurilor de oscilaţie prin modularea lungimii cavităţii cuplate cu cea laser [317]. Configuraţia experimentală utilizată este prezentată în fig. 5.17. Cavitatea cuplată este formată dintr-o oglindă a cavităţii laser active şi o oglindă exterioară fixată pe un traductor electromecanic, excitat cu un semnal triunghiular de frecvenţă joasă.

Spre deosebire de metodele în care sincronizarea modurilor de oscilaţie se face prin vibrarea uneia din oglinzile cavităţii active, vibrarea

oglinzii cavității cuplate prezintă avantajul că reglajul cavității active nu este perturbat.

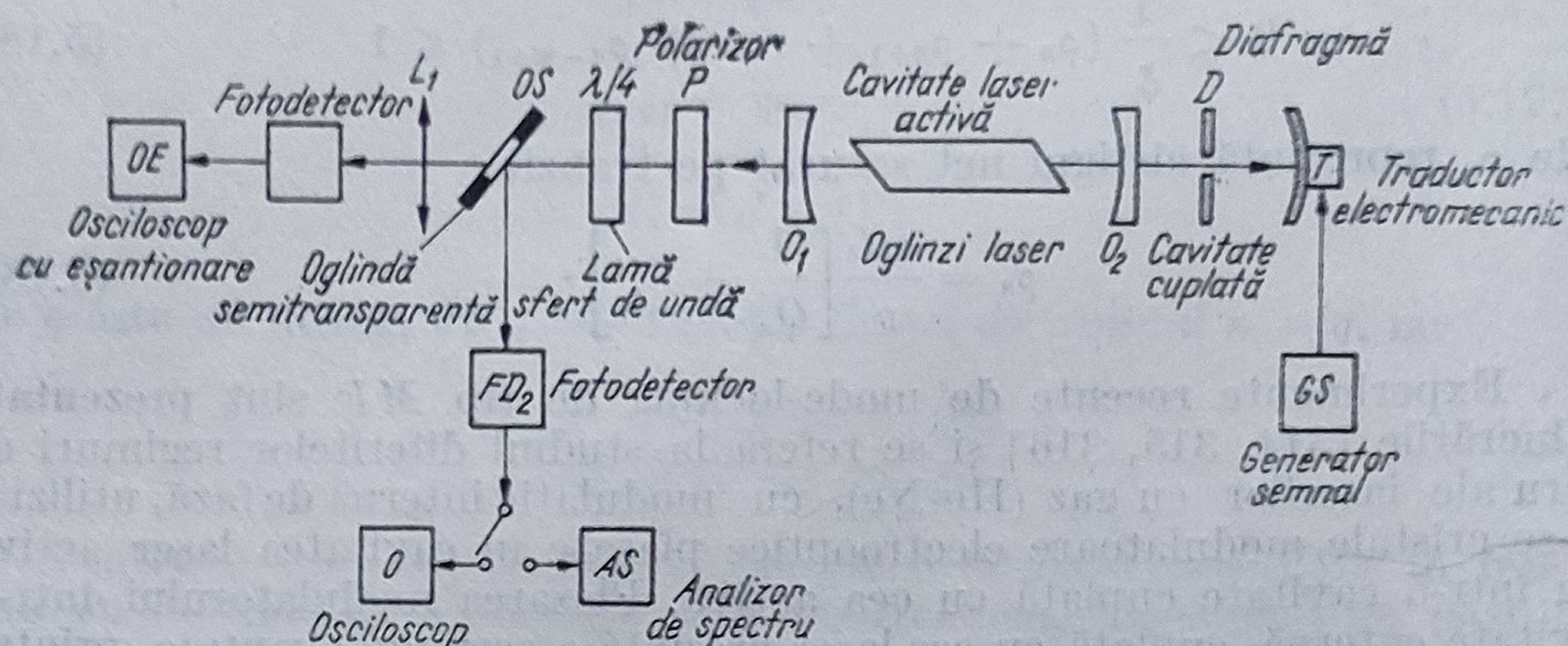


Fig. 5.17

Prin această metodă se obține un regim de funcționare repetitiv, care constă în alternarea perioadelor în care laserul funcționează în regim de mode-locking cu perioadele în care laserul funcționează în regim relaxat. Sistemul a fost aplicat la măsurarea timpului de răspuns al fotodetectorilor și a dispersiei fibrelor optice.

Observație: Metoda modurilor cuplate utilizată mai sus pentru studiul sincronizării active a modurilor de oscilație se bazează pe ipoteza saturării independente a modurilor de oscilație care nu este valabilă decît aproximativ, datorită lărgirii neomogene a liniei. În plus, aceasă metodă este complicată atunci cînd numărul modurilor cuplate este mare astfel încît pentru un studiu complet trebuie luate în consideare și alte metode.

5.7.3. Autosincronizarea modurilor de oscilație

Datorită neliniarităților intrinseci care caracterizează interacția dintre mediul laser și radiația electromagnetică din cavitate, în anumite condiții se produce o cuplare puternică a modurilor de oscilație, care determină o relație fixă între fazele acestora, sincronizarea corespunzătoare a modurilor de oscilație fiind cunoscută sub numele de *self-locking*.

Pentru prima dată posibilitatea operării în regim de self-locking a fost discutată de Lamb [86] deși existența sa fusese semnalată anterior de către Bennett [318] și alții.

Explicarea operării self-locking a laserilor se poate face direct, prin luarea în considerare a tonurilor combinate care apar ca urmare a multiplexării în mediul neliniar a modurilor de oscilație și care au tendința să „tîrască” frecvența modurilor astfel încît ecartul de frecvență dintre acestea să devină constant.

În cele ce urmează se prezintă un model de analiză al regimului de self-locking bazat pe ecuațiile lui Lamb, în cazul laserului cu trei moduri de oscilație, în condiții de acord simetric (moduri dispuse simetric față de linia centrală) pentru evidențierea caracteristicilor generale ale acestuia tip de funcționare [319].

Ecuaţiile modurilor cuplate pentru amplitudinile modurilor au forma [86]

$$\dot{E}_1 = \alpha_1 E_1 - \beta_1 E_1^3 - \theta_{12} E_1 E_2^2 - \theta_{13} E_1 E_3^2 - (\eta_{23} \cos \psi + \zeta_{23} \sin \psi) E_2^2 E_3$$

$$\dot{E}_2 = \alpha_2 E_2 - \beta_2 E_2^3 - \theta_{21} E_2 E_1^2 - \theta_{23} E_2 E_3^2 - (\eta_{13} \cos \psi + \zeta_{13} \sin \psi) E_1 E_2 E_3$$

$$\dot{E}_3 = \alpha_3 E_3 - \beta_3 E_3^3 - \theta_{31} E_3 E_1^2 - \theta_{32} E_3 E_2^2 - (\eta_{21} \cos \psi + \xi_{21} \sin \psi) E_1 E_2^2, \quad (5.182)$$

semnificaţiile diferiţilor parametri fiind specificate în paragraful 5.6. Factorul de fază ψ definit prin

$$\psi = (2\omega_2 - \omega_1 - \omega_3)t + 2\varphi_2 - \varphi_1 - \varphi_3 \quad (5.183)$$

satisface ecuaţia de fază

$$\dot{\psi} = \sigma + f(E_1^2, E_2^2, E_3^2) + g(E_1, E_2, E_3) \sin \psi + h(E_1, E_2, E_3) \cos \psi \quad (5.184)$$

unde mărimile σ, f, g, h pot fi determinate pe baza expresiilor coeficienţilor din ecuaţiile de mai sus stabilite de Lamb [86].

În condiţii de acord simetric : $\sigma \simeq 0$, $\xi \simeq 0$, $E_1 \simeq E_3$, $f = h = 0$.

În condiţii de self-locking $E_1^2 + E_2^2 + E_3^2 = \text{const} = I$. Cu notaţia $y_1 = E_1^2$ se obţine sistemul de ecuaţii diferenţiale neliniare [319]

$$\dot{\psi} = g(y_1 I) \sin \psi$$
$$\dot{y}_1 = [A_1 - B_1 y_1 - C_1(\psi) I + 2C_1(\psi) y_1)] y_1 \quad (5.184)$$

ale cărei puncte singulare ($\dot{\psi} = 0$) corespund stărilor de self-locking

$$2\omega_2 - \omega_1 - \omega_3 = 0 \quad (5.185)$$

$$2\varphi_2 - \varphi_1 - \varphi_3 = \text{const.} \quad (5.186)$$

caracterizate de ecart constant între moduri şi fază relativă a modurilor constantă.

Cele două puncte singulare ale sistemului (5.184) conduc la valorile $\psi = 0$ şi $\psi = \pi$ pentru faza relativă.

Se poate arăta că în cazul condiţiei (5.185) semnalul de ieşire va fi format dintr-un tren de impulsuri cu rata de repetiţie egală cu ecartul de frecvenţă al modurilor (self-locking de tipul întîi). În cazul condiţiei (5.186), trenul de impulsuri va avea rata de repetiţie egală cu un multiplu al ecartului de frecvenţă între moduri (self-locking de tipul al doilea).

Pe baza principiului emisiei maxime se poate arăta că tipul de self-locking care se produce este funcţie de poziţia mediului activ în cavitate în raport cu oglinzile acesteia. Utilizîndu-se teorema de stabilitate a lui Liapunov se arată că funcţie de condiţiile experimentale cele două tipuri de self-locking sînt stabile.

Formele explicite ale condiţiilor de stabilitate în cazul laserului cu trei moduri în regim self-locking sînt următoarele [320]

$\psi = 0$

$$\frac{2[\alpha_1 - (\theta_{12} + \eta_{23})]I}{\beta_1 + \theta_{13} - 2(\theta_{13} + \eta_{23})}(\eta_{13} + \eta_{23} + \eta_{21}) - I(\eta_{23} + \eta_{21}) < 0; \tag{6.187}$$

b) $\psi = \pi$

$$\frac{-2[\alpha_1 - (\theta_{12} - \eta_{23})]I}{\beta_1 + \theta_{13} - 2(\theta_{13} + \eta_{23})}(\eta_{13} + \eta_{23} + \eta_{21}) + I(\eta_{23} + \eta_{21}) < 0. \tag{5.188}$$

putînd fi particularizate pentru diferite tipuri de laseri.

În figura 5.18 este prezentată o configuraţie experimentală utilizată pentru studiul regimului de self-locking al unui laser cu He-Ne cu cavitate cuplată [321].

Modificarea cîştigului cavităţii s-a făcut cu ajutorul atenuatorului A_t, realizat cu ajutorul unei lame subţiri de sticlă înclinată la unghi Brew-

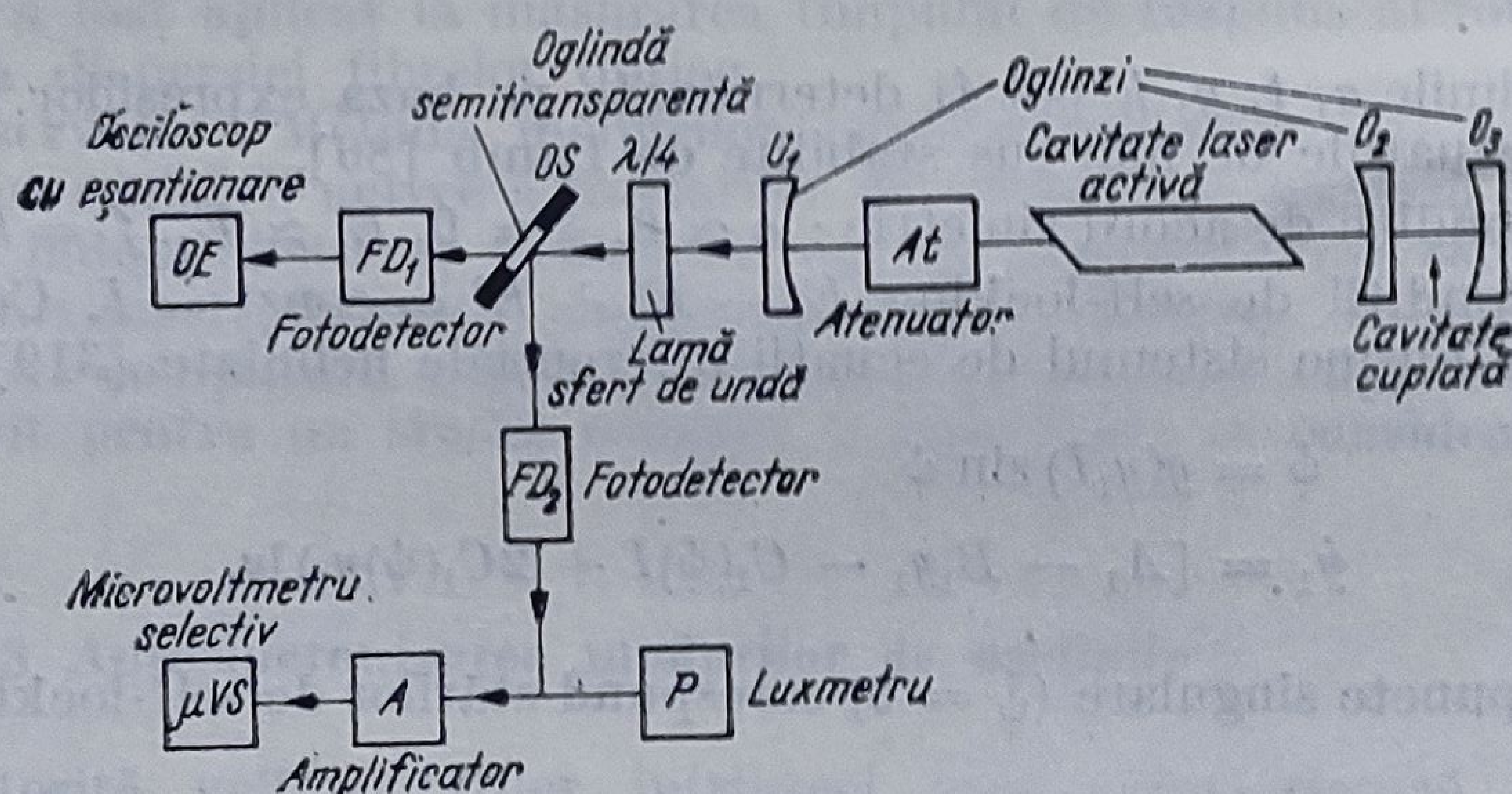


Fig. 5.18

ster faţă de axa cavităţii. În cazul utilizării unei cavităţi cuplate la cavitatea laser activă, funcţionarea self-locking a laserului poate fi controlată prin fasciculul întors înapoi în cavitatea activă, datorită caracterului selectiv al cavităţii cuplate.

Aprecierea gradului de cuplarea modurilor se poate face prin compararea lărgimilor de bandă ale semnalului fotodetectat, în jurul frecvenţei ecartului modurilor axiale, măsurate în regim self-locking şi liber.

Metoda prezentată defineşte condiţiile de funcţionare ale laserului în regim self-locking, cu cavitate cuplată, cu diferite grade de cuplarea modurilor, cunoaşterea lor fiind utilă pentru optimizarea experimentelor de cuplare activă a modurilor.

Observaţie : Alte metode şi tehnici de mode-locking, prezentate pe larg în literatura de specialitate se referă la : metodele de mode-locking pasiv în care dispozitivele modulatoare sînt înlocuite cu absorbanţi neliniari [322], metode de mode-locking a doi oscilatori laseri separaţi [323], metode de mode-locking prin pompajul laserilor cu impulsuri de la un laser în regim de mode-locking [324] etc.

6. TEORIA CUANTICĂ A LASERILOR

6.1. Descrieri cuantice ale laserilor

Teoria cuantică a laserilor este utilizată pentru a explica proprietățile statistice ale radiației laser, corelate cu emisia spontană a atomilor. Natura cuantică a cîmpului de radiație presupune luarea în considerare a *caracterului de operator* al acestui cîmp, în scrierea ecuațiilor de interacție cîmp-substanță, fiind cuantificate atît mediul atomic cît și cîmpul laser.

Principalele probleme explicate de teoria cuantică se referă la : lărgimea intrinsecă a liniei laser, amorsarea oscilației din vid și statisticile de fotoni. Astfel, dacă din teoria semicuantică rezultă o linie laser în principiu monocromatică, în teoria cuantică se arată că emisia spontană, zgomotul termic și fluctuațiile de zero determină o lărgime intrinsecă a liniei laser, care poate fi evaluată (se presupune zgomotul ,,tehnic'' datorat vibrațiilor descărcărilor în gaze etc., eliminat).

În ceea ce privește amorsarea oscilației laser, din vid, aceasta este explicată în teoria cuantică cu ajutorul emisiei spontane, nefiind necesar un cîmp ,,inițial'' ca în teoria semicuantică.

În sfîrșit, statisticile de fotoni pentru cîmpul de radiație pot fi studiate numai în teoria cuantică.

Există trei formalisme, în principiu echivalente, de tratare cuantică a laserilor și anume : formalismul ecuațiilor cuantice Langevin, formalismul matricei densitate și formalismul ecuației Fokker-Planck generalizate,

Din punct de vedere cronologic, în 1964, a apărut prima teorie neliniară a zgomotului laser și a coerenței, datorită lui Haken, bazată pe ecuații de tip Langevin, în care forța ,,de frecare'' este neliniară, iar variabilele sînt operatori. Pe baza soluției acestei ecuații, obținută prin liniarizare (sub prag) sau cuasiliniarizare (peste prag), s-a arătat că proprietățile statistice ale radiației sînt esențial diferite pentru cele două regimuri de operare. Dezavantajul acestui formalism, privind aplicarea sa în jurul pragului de oscilație, a fost înlăturat ulterior (Risken, 1965) prin stabilirea ecuației Fokker-Planck corespunzătoare ecuației Langevin, observîndu-se că amplitudinea cîmpului poate fi privită ca o variabilă clasică.

În paralel cu perfecționarea acestor formalisme, de către diferiți autori, s-a dezvoltat formalismul matricei densitate al laserilor, un rol important jucîndu-l în această direcție, lucrările lui Scully și Lamb (1966 — — 1968).

Ulterior s-a arătat că, utilizîndu-se reprezentarea stărilor coerente, ecuaţia Fokker-Planck poate fi stabilită pe baza ecuaţiei matricei densitate pentru cîmp, astfel că se justifică rolul important al acestei ecuaţii pentru studiul aspectelor cuantice ale laserilor.

În anul 1967 s-a obţinut ecuaţia Fokker-Planck generalizată exactă pentru toate variabilele macroscopice necomutative (Haken şi alţii).

Corelaţiile principiale dintre aceste formalisme sînt prezentate în schema din fig. 6.1. În cele ce urmează se vor discuta cele trei tipuri de formalisme, utilizîndu-se metoda indicată pe figură şi se vor

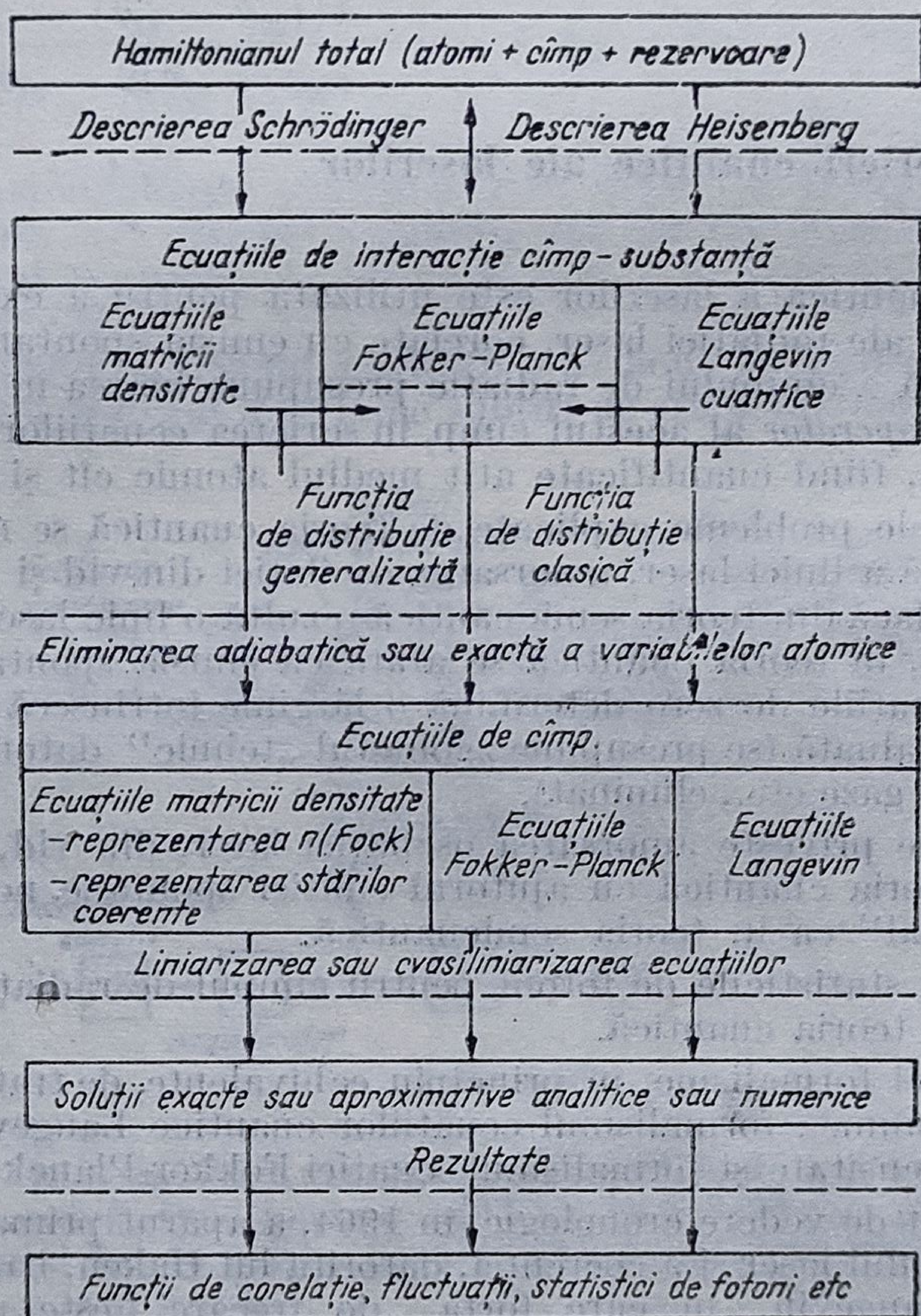


Fig. 6.1

evidenţia şi principalele rezultate privind comportarea cuantică a laserilor. Pentru simplificare, se admit în continuare ipotezele teoriei semicuantice, introduse în § 5.2 şi se mai fac următoarele ipoteze suplimentare: se consideră atomii staţionari; se admite oscilaţia pe un singur mod la rezonanţă ($\Omega = \Omega_n = \omega_n$), ale cărui variaţii spaţiale se neglijează; se lucrează în aproximaţia adiabatică, adică cîmpurile au o variaţie temporală lentă în intervale $T \sim 1/\gamma_{ab}$, deci comparabile cu timpul de viaţă atomic efectiv, datorită condiţiei $T \ll \tau_f$, unde τ_f este timpul de creştere exponenţială a cîmpului în aproximaţia liniară.

2.6. Formalismul matricei densitate

6.2.1. Operatorul densitate redus

Descrierea fenomenologică a rezervoarelor, utilizată în teoria semicuantică, nu mai corespunde exigenţelor teoriei cuantice, ca urmare a caracterului de operator al cîmpului.

Întrucît energia pierdută de sistem se distribuie între gradele de libertate (care tind către infinit) ale rezervorului, în procesele ireversibile de disipare corespunzătoare, nu pot fi „observate'' gradele de libertate ale rezervorului astfel că trebuie găsită modalitatea de descriere a sistemului separat.

O astfel de posibilitate o oferă *operatorul densitate redus*, care ia în considerare evoluţia sistemului şi modul în care aceasta este afectată de rezervor, fără a se acorda atenţie evoluţiei rezervorului.

Operatorul densitate redus pentru un sistem S în interacţie cu un rezervor R se introduce prin analogie cu densitatea de probabilitate condiţională din spaţiul fazelor, conform corespondenţei din tabelul 6.1.

Tabelul 6.1

Mărimea implicată	Clasic	Cuantic
ρ_{SR} (S-sistem, R-rezervor)	Densitatea de probabilitate condiţională în spaţiul fazelor ρ_{RS} (p_S, q_S, p_R, q_R) pentru sistem şi rezervor	Operatorul densitate pentru sistem şi rezervor ρ_{SR}
ρ_S	Densitate de probabilitate asociată cu sistemul $(\rho_S(p_S, q_S))$	Operatorul densitate pentru sistem (redus) (ρ_S)
Valoarea medie a mărimii O asociate ansamblului sistem-rezervor	$\langle O\rangle = \int \rho_{RS} O \, dp_S dq_S dp_R dq_R$	$\langle \hat{O}\rangle = \mathrm{Urm}(\hat{\rho}_{SR}\hat{O})$
Valoarea medie a mărimii O_S asociate sistemului	$\langle O_S\rangle = \int \rho_S(p_S, q_S) O_S dp_S dq_S$	$\langle \hat{O}_S\rangle = \mathrm{Urm}(\hat{\rho}_S \hat{O}_S)$
Evaluarea lui ρ_S în general	$\rho_S(p_S, q_S) = \int \rho_{SR}(p_S q_S p_R q_R) \, dp_R \, dq_R$	$\hat{\rho}_S = \mathrm{Urm}_R(\hat{\rho}_{RS})$
Sistemul şi rezervorul sînt independente	$\rho_{SR} = \rho_S \rho_R$	$\hat{\rho}_{SR} = \hat{\rho}_S \hat{\rho}_R$

În general, neglijarea corelaţiilor introduse de interacţia $S \leftrightarrow R$ face ca operatorul densitate redus pentru atomi ρ_A să descrie o stare mixtă, echivalentă cu o pierdere de informaţie, datorită neconsiderării evoluţiei rezervorului. Ca urmare, operatorul densitate redus va permite descrierea efectelor de zgomot în cursul procesului de reducere.

Astfel de sisteme aflate în interacție care pot fi studiate cu ajutorul operatorului densitate redus în cazul laserilor, sînt: sistemul atomi-rezervoare atomice, sistemul cîmp-rezervoare cîmp, sistemul cîmp-atomi activi. De exemplu, operatorul redus pentru cîmp ρ_C este dat relația

$$\rho_C = \mathrm{Urm}_A\,(\rho_{CA}) \tag{6.1}$$

unde ρ_{CA} este operatorul densitate pentru sistemul total.

În reprezentarea Fock, operatorul densitate pentru cîmpul laser are forma generală

$$\rho = \sum_{n,n'} \rho_{n,n'}\,|n\rangle\langle n'| \tag{6.2}$$

unde $\rho_{n,n}$ este probabilitatea stării cîmpului cu n fotoni, numită și *statistica fotonilor* (indicele pentru cîmp a fost suprimat).

Cîmpul modului laser considerat, este dat în descrierea Schrödinger de expresia

$$E(r) = E_0 \sin\,(k\,z)\,(\hat{a} + \hat{a}^+) \tag{6.3}$$

$\hat{a}^+$ și $\hat{a}$ fiind operatorii de creare și anihilare pentru fotoni iar E_0 un factor de normare a amplitudinii ($E_0 = \sqrt{\hbar\Omega/\varepsilon_0 V}$), numit cîmpul electric „pe foton", V fiind volumul rezonatorului laser. Se obține valoarea medie

$$\langle E\rangle = E_0 \sin\,(kz)\,\mathrm{Urm}\,[\hat{\rho}(\hat{a} + \hat{a}^+)] =$$

$$= E_0 \sin\,(kz) \sum_n (\sqrt{n+1})\,\rho_{n,n+1} + \mathrm{c.c.})$$

Prin urmare, dacă $\hat{\rho}$ este diagonal $\langle E\rangle = 0$.

Exemple particulare de operatori densitate pentru cîmp: — starea Fock (pură):

$$\hat{\rho} = |n\rangle\langle n| \quad \text{sau} \quad \rho_{n,n'} = \delta_{nn'},\ \langle E\rangle = 0; \tag{6.5}$$

— starea coerentă pură:

$$\hat{\rho} = |v\rangle\langle v| \ \text{sau}\ \rho_{nn'} = \exp\,(-|v|^2)\,\frac{v^n (v^*)^{n'}}{\sqrt{n!\,n'!}}\ ,\ \langle E\rangle \neq 0 \tag{6.6}$$

9.2.2. Modelul cuantic al laserilor

Ca și teoria semicuantică, teoria cuantică a laserilor implică existența unui *mediu activ neliniar* și a unor *mecanisme de amortizare* a oscilației. Mediul activ neliniar care furnizează energie cîmpului modului este format din atomii activi care constituie rezervoarele de cîștig. În același timp procesele de pierderi se consideră liniare, fiind determinate de rezervoarele de pierderi (fig. 6.2).

Astfel de sisteme aflate în interacţie care pot fi studiate cu ajutorul operatorului densitate redus în cazul laserilor, sînt: sistemul atomi-rezervoare atomice, sistemul cîmp-rezervoare cîmp, sistemul cîmp-atomi activi. De exemplu, operatorul redus pentru cîmp ρ_C este dat relaţia

$$\rho_C = \text{Urm}_A\,(\rho_{CA}) \tag{6.1}$$

unde ρ_{CA} este operatorul densitate pentru sistemul total.

În reprezentarea Fock, operatorul densitate pentru cîmpul laser are forma generală

$$\rho = \sum_{n,n'} \rho_{n,n'}\,|n\rangle\langle n'| \tag{6.2}$$

unde $\rho_{n,n}$ este probabilitatea stării cîmpului cu n fotoni, numită şi *statistica fotonilor* (indicele pentru cîmp a fost suprimat).

Cîmpul modului laser considerat, este dat în descrierea Schrödinger de expresia

$$E(r) = E_0 \sin\,(k\,z)\,(\hat{a} + \hat{a}^+) \tag{6.3}$$

$\hat{a}^+$ şi $\hat{a}$ fiind operatorii de creare şi anihilare pentru fotoni iar E_0 un factor de normare a amplitudinii ($E_0 = \sqrt{\hbar\,\Omega/\varepsilon_0 V}$), numit cîmpul electric „pe foton'', V fiind volumul rezonatorului laser. Se obţine valoarea medie

$$\langle E\rangle = E_0 \sin\,(kz)\ \text{Urm}\,[\hat{\rho}(\hat{a} + \hat{a}^+)] =$$

$$= E_0 \sin\,(kz) \sum_n (\sqrt{n+1})\,\rho_{n,n+1} + \text{c.c.})$$

Prin urmare, dacă $\hat{\rho}$ este diagonal $\langle E\rangle = 0$.

Exemple particulare de operatori densitate pentru cîmp: — starea Fock (pură):

$$\hat{\rho} = |n\rangle\langle n| \quad \text{sau} \quad \rho_{n,n'} = \delta_{nn'},\ \langle E\rangle = 0; \tag{6.5}$$

— starea coerentă pură:

$$\hat{\rho} = |v\rangle\langle v| \ \text{sau}\ \rho_{nn'} = \exp\,(-|v|^2)\,\frac{v^n (v^*)^{n'}}{\sqrt{n!\,n'!}}\ ,\ \langle E\rangle \neq 0 \tag{6.6}$$

9.2.2. Modelul cuantic al laserilor

Ca şi teoria semicuantică, teoria cuantică a laserilor implică existenţa unui *mediu activ neliniar* şi a unor *mecanisme de amortizare* a oscilaţiei. Mediul activ neliniar care furnizează energie cîmpului modului este format din atomii activi care constituie rezervoarele de cîştig. În acelaşi timp procesele de pierderi se consideră liniare, fiind determinate de rezervoarele de pierderi (fig. 6.2).

Mediul activ neliniar este considerat format dintr-un ansamblu de atomi cu două nivele $|a>$ și $|b>$, al căror pompaj se face cu ratele λ_a, respectiv λ_b.

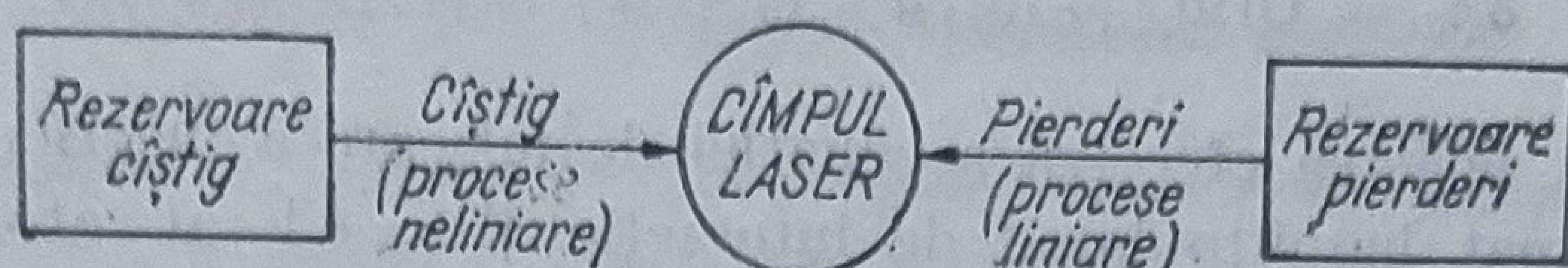


Fig. 6.2

Pentru descrierea proceselor de amortizare se mai consideră două nivele auxiliare $|c>$ și $|d>$ caracterizate de constantele de amortizare γ_a și γ_b. Acest model (datorat lui Scully și Lamb) este prezentat schematic în fig.6.3. Fie $\rho_C(\hat{a}, \hat{a}^+, t)$ matricea densitate pentru radiația laser. Ecua-

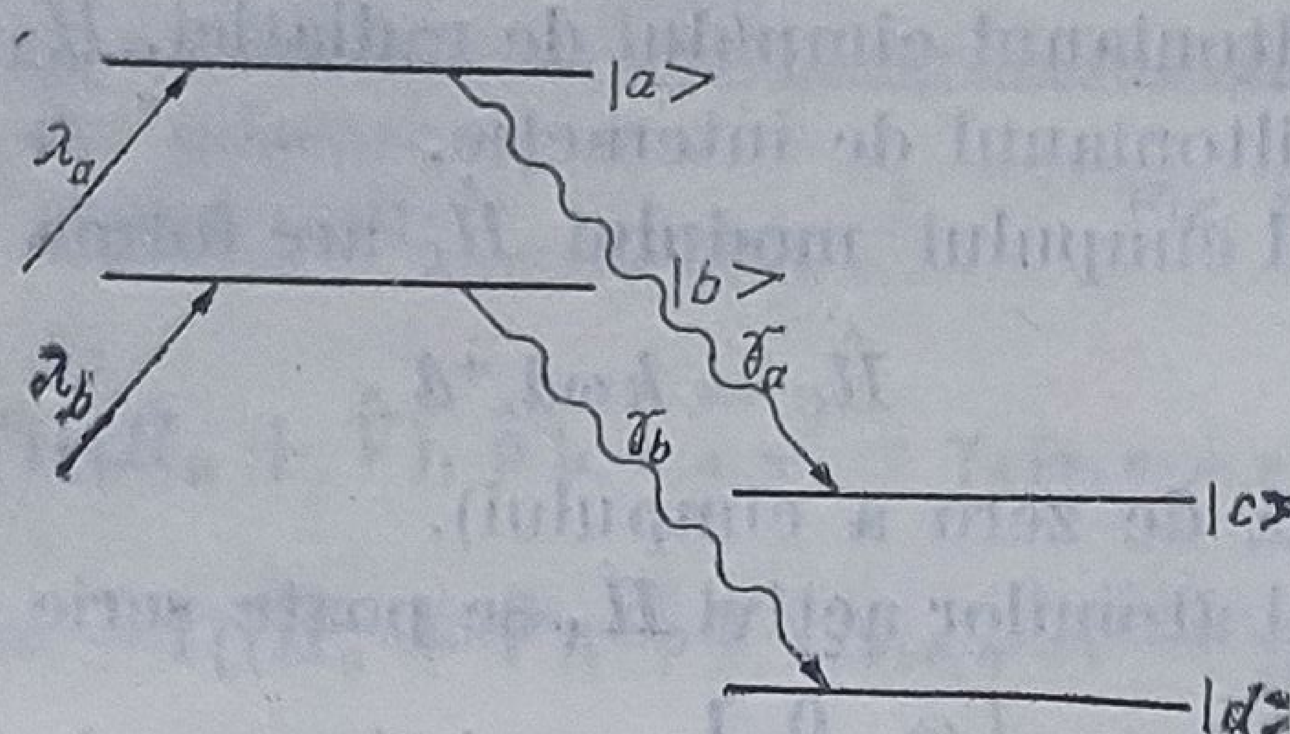


Fig . 6.3

ția de mișcare pentru ρ_C se obține considerînd mai întîi contribuția la cîmp datorită unui singur atom. Să notăm cu t_0 momentul la care un atom este pompat pe nivelul $|a>$ cu rata de excitare λ_a (se consideră pentru simplificare $\lambda_b = 0$). Modificarea matricei densitate ρ_C datorită acestui proces de pompaj al unui singur atom în intervalul T de interacție efectivă cu cîmpul (după T atomul este înlăturat din sistem), are forma generală

$$\delta\rho_C(\hat{a}, \hat{a}^+, t) = \rho_C(\hat{a}, \hat{a}^+, t_0 + T) - \rho_C(\hat{a}, \hat{a}^+, t_0). \qquad (6.7)$$

La momentul t_0 atomul și cîmpul sînt necorelați astfel încît se poate scrie

$$\rho_{CA}(t_0) = \rho_C(t_0)\,\rho_A(t_0) = \rho_0\,\rho_A(t_0) \qquad (6.8)$$

unde

$$\rho_A(t_0) = |a><a| = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \qquad (6.9)$$

deci

$$\rho_{CA}(t_0) = \begin{bmatrix} \rho_0 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix}. \qquad (6.10)$$

Pentru a obține pe $\rho_C(\hat{a}, \hat{a}^+, t_0 + T)$ trebuie calculată matricea densitate a sistemului total cîmp-atomi la momentul $t_0 + T$ și apoi calculată urma peste variabilele atomice conform ecuației (6.1). Se poate scrie

$$\rho_C(\hat{a}, \hat{a}^+, t_0 + T) = \sum_\alpha \rho_{\alpha\alpha}(\hat{a}, \hat{a}^+ t_0 + T), \ (\alpha = a, b). \qquad (6.11)$$

Prin urmare, contribuţia la cîmp a unui singur atom are forma generală

$$\delta \rho_C = \mathrm{Urm}_A [\hat{\rho}_{CA}(\hat{a}, \hat{a}^+, t_0 + T) - \rho_{CA}(\hat{a}, \hat{a}^+, t_0)]. \tag{6.12}$$

Pentru scrierea efectivă a ecuaţiei de mişcare a matricei densitate, trebuie evaluat hamiltonianul de interacţie $\hat{W} = \hbar \hat{V}$ al atomilor activi cu cîmpul laser monomod, forma generală a hamiltonianului total $\hat{H}'$ fiind următoarea

$$\hat{H}' = \hat{H}'_C + \hat{H}'_A + \hat{W} \tag{6.13}$$

sau în unităţi $H/\hbar$

$$\hat{H} = \hat{H}_C + \hat{H}_A + \hat{V} = \hat{H}_0 + \hat{V} \tag{6.14}$$

unde $\hat{H}_C$ este hamiltonianul cîmpului de radiaţiei, $\hat{H}_A$ este hamiltonianul atomic, iar $\hat{V}$ hamiltonianul de interacţie.

Hamiltonianul cîmpului modului $\hat{H}_C$ are forma

$$\hat{H}_C = \hbar \omega \hat{a}^+ \hat{a} \tag{6.15}$$

(s-a neglijat energia de zero a cîmpului).

Hamiltonianul atomilor activi $\hat{H}_A$ se poate scrie sub forma

$$\hat{H}_A = \begin{bmatrix} \omega_a & 0 \\ 0 & \omega_b \end{bmatrix} = \omega_a \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- + \omega_b \hat{\sigma}_- \hat{\sigma}_+ \tag{6.16}$$

unde $\hat{\sigma}_\pm = \frac{1}{2}(\hat{\sigma}_1 \pm i\hat{\sigma}_2)$, $\hat{\sigma}_1$ şi $\hat{\sigma}_2$ fiind operatorii lui Pauli.

În mod analog, conform celor prezentate în § 1.9, se scrie hamiltonianul de interacţie $\hat{V}$ sub forma

$$\hat{V} = \begin{bmatrix} 0 & V_{ab} \\ V_{ab} & 0 \end{bmatrix} = \hat{V}_{ab}(\hat{\sigma}_+ + \hat{\sigma}_-) \tag{6.17}$$

unde $\hat{V}_{ab}\hbar = -\hat{d}E = g(\hat{a} + \hat{a}^+)$, (6.18)

$g = -eE_0 d/\sqrt{2}\hbar$ fiind o constantă de cuplaj. Rezultă

$$\hat{V} = g(\hat{a} + \hat{a}^+)\,(\hat{\sigma}_+ + \hat{\sigma}_-). \tag{6.20}$$

În aproximaţia undei rotitoare, se neglijează termenii antirezonanţi astfel că la rezonanţă (6.20) devine

$$\hat{V}' = g(\hat{\sigma}_+ \hat{a} + \hat{\sigma}_- \hat{a}^+) = g \begin{bmatrix} 0 & \hat{a} \\ \hat{a}^+ & 0 \end{bmatrix} \tag{6.21}$$

expresie care arată că au fost reţinute numai procesele de tipul : absorbţie la tranziţia $|b\rangle \to |a\rangle$ şi emisie la tranziţia $|a\rangle \to |b\rangle$ fiind neglijate emisia de fotoni la tranziţia $|b\rangle \to |a\rangle$ şi absorbţia de fotoni la tranziţia $|a\rangle \to |b\rangle$. Ca urmare, hamiltonianul total al sistemului cîmp-atomi

are forma

$$\hat{H} = \omega \hat{a}^+ \hat{a} + \omega_a \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- + \omega_b \hat{\sigma}_- \hat{\sigma}_+ + g(\hat{a} \hat{\sigma}_+ + \hat{a}^+ \hat{\sigma}_-). \tag{6.22}$$

9.2.3. Ecuațiile de mișcare pentru operatorul densitate

a) *Ecuațiile de mișcare în aproximația Wigner-Weisskopf*

În scrierea efectivă a ecuațiilor de mișcare pentru operatorul densitate trebuie să se țină seama de dezintegrarea nivelelor $|a>$ și $|b>$ cu constantele γ_a, respectiv γ_b.

Pentru modelul cu patru nivele prezentat în fig. 6.4 se poate utiliza aproximația Wigner-Weisskopf, discutată în paragraful 1.10.

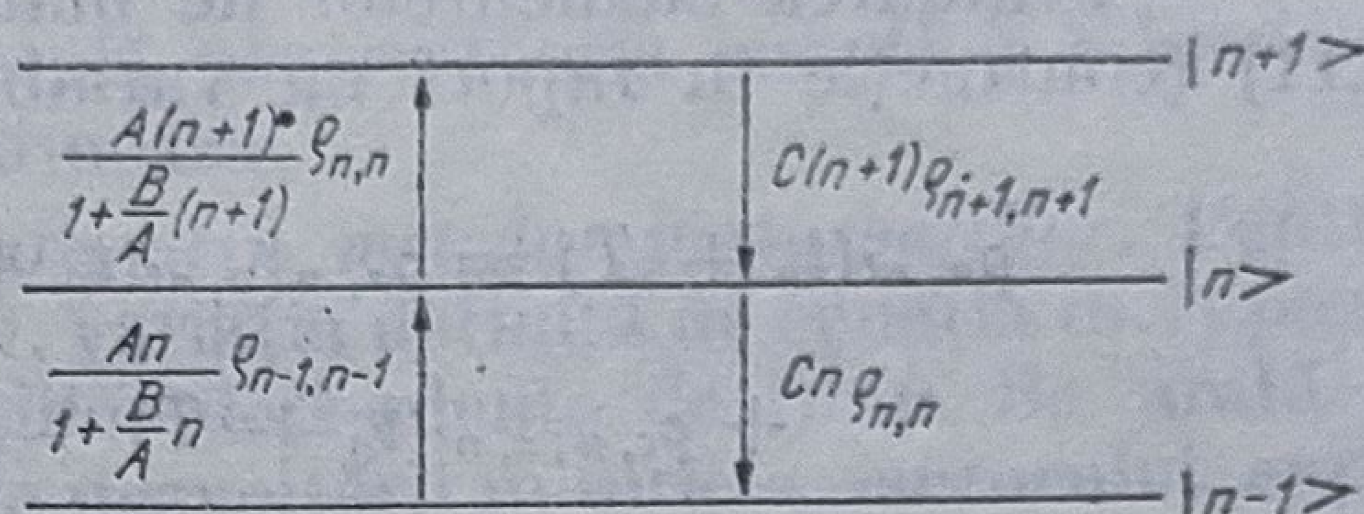


Fig. 6.4

Se obțin pentru elementele de matrice ale operatorului densitate, ecuațiile de mișcare ale sistemului total atomi-radiație următoare

$$\rho_{a,n;a,n'} = -\mathrm{i}[(\hat{H}_0 + \hat{V}), \hat{\rho}]_{a,n;a,n'} - \gamma_a \rho_{a,n;a,n'} \tag{6.23}$$

$$\dot{\rho}_{b,n+1;b,n'+1} = -\mathrm{i}[(\hat{H}_0 + \hat{V}), \hat{\rho}]_{b,n+1;b,n'+1} - \gamma_b \rho_{b,n+1;b,n'+1} \tag{6.24}$$

$$\dot{\rho}_{a,n;b\,n'+1} = -\mathrm{i}\,[(\hat{H}_0 + \hat{V}), \hat{\rho}]_{a,n;b,n'+1} - \gamma_{ab} \rho_{a,n;b,n'+1} \tag{6.25}$$

$$\dot{\rho}_{b,n+1;n'} = -\mathrm{i}[(\hat{H}_0 + \hat{V}), \hat{\rho}]_{b,n+1;v,n'} - \gamma_{ab} \rho_{b,n+1;a,n'} \tag{6.26}$$

$$\dot{\rho}_{c,n;c,n'} = \gamma_a \rho_{a,n;a,n'} \tag{6.27}$$

$$\dot{\rho}_{d,n+1;d,n'+1} = \gamma_b \rho_{b,n+1;b,n'+1} \,. \tag{6.28}$$

În continuare, stabilirea ecuației complete de mișcare pentru matricea densitate, presupune următoarele etape:

— integrarea directă a ecuațiilor (6.27) și (6.28) sub forma

$$\rho_{c,n;c,n'}(t_0 + T) = \gamma_a \int_{t_0}^{t_0+T} \mathrm{d}t' \rho(t')_{a,n;a,n'} \tag{6.29}$$

și similar pentru $\rho_{d,n+1;d,n'+1}$;

— integrarea ecuațiilor (9.23) — (9.26) care implică nivelele laser, scrise compact astfel:

$$\dot{\rho} = -\mathrm{i}[C\rho - \rho C'] \tag{6.30}$$

unde

$$\rho = \begin{bmatrix} \rho_{a,n;a,n'} & \rho_{a,n;b,n'+1} \\ \rho_{b,n+1;a,n'} & \rho_{b,n+1;b,n'+1} \end{bmatrix} \tag{6.31}$$

iar matricea C (sau C' obținută din C prin înlocuirea lui n cu n' și considerarea conjugatei hermitice) are forma

$$C = \begin{bmatrix} \omega_a + n\omega - \frac{i}{2}\gamma_a & V_{a,\,n;\,b,\,n+1} \\ V_{b,n+1;\,a,\,n} & \omega_b + (n+1)\,\omega - \frac{i}{2}\gamma_b \end{bmatrix}. \tag{6.32}$$

Se obține

$$\rho(t) = e^{-iC(t-t_0)}\,\rho(t_0)\,e^{iC'(t-t_0)}\,; \tag{6.33}$$

— evaluarea elementelor de matrice $\rho_{n,n'}(t_0+T)$ conform ecuației (9.11) (contracție în raport cu variabilele atomice), din ecuația (9.33):

$$\rho_{n,\,n'}(t_0+T) = \rho_{a,\,n;\,a,\,n'}(t_0+T)\rho_{b,\,n;\,b,n'}(t_0+T) + \\ + \rho_{c,\,n;\,c,\,n'}(t_0+T) + \rho_{d,\,n;\,d,\,n'}(t_0+T)\,; \tag{6.34}$$

— stabilirea expresiei $\delta\rho_{n,n'}$, a modificării matricei densitate datorită unui atom, conform ecuației (6.8):

$$\delta\rho_{n,n'} = \rho_{n,\,n'}(t_0+T) - \rho_{n,\,n'}(t_0) = \\ = -\,[(n+1)R_{n,\,n'} + (n'+1)R^{*}_{n',\,n}]\,\rho_{n,\,n'} + \\ + [R_{n-1,\,n;-1} + R^{*}_{n'-1,\,n-1}](nn')^{1/2}\rho_{n-1,\,n'-1} \tag{6.35}$$

unde

$$R_{n,\,n'} = \\ = g^2\frac{\gamma_b(\gamma_{ab}+i\Delta)+g^2(n-n')}{\gamma_a\gamma_b(\gamma_{ab}^2+\Delta^2)\,2\gamma_{ab}^2 g^2(n+1+n'+1)+g^2(n'-n)\,(g^2(n'-n)+i\Delta(\gamma_a-\gamma_b))} \tag{6.36}$$

iar

$$\Delta = \omega - \Omega, \tag{6.37}$$

g fiind un coeficient de cuplaj;

— stabilirea expresiei $\Delta\rho_{n,\,n'}$, a modificării macroscopice a lui $\rho_{n,\,n'}$, datorită celor $N_a = \lambda_a'\Delta t$ atomi pompați în intervalul Δt pe nivelul superior ($\lambda_a' = \lambda_a V$), în ipoteza $\rho_{n,\,n'}(t_0) = \rho_{n,\,n'}(t)$ (matricea densitate a cîmpului nu se schimbă semnificativ datorită unui singur atom):

$$\Delta\rho_{n,\,n'} = N_a\delta\rho_{n,\,n'} = \lambda_a'\Delta t\delta\rho_{n,\,n'}\,(T < \Delta t \leqslant \tau_f)\,; \tag{6.38}$$

— scrierea ecuației de mișcare (de tip master) generală pentru operatorul densitate $\hat{\rho}$:

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = \left(\frac{d\hat{\rho}}{dt}\right)_{cîștig} + \left(\frac{d\hat{\rho}}{dt}\right)_{pierderi} \tag{6.39}$$

unde prima derivată din membrul drept se calculează ținîndu-se seama de (6.38), iar a doua derivată se obține printr-o analiză asemănătoare a proceselor de pierderi.

Se obține în final *ecuația master a lui Pauli*

$$\frac{d\rho_{n,n'}}{dt} = \lambda'_a\{-[(n+1)R_{n,n'} + (n'+1)R^*_{n',n}]\rho_{n,n'} +$$

$$+ [R_{n-1,n'-1} + R^*_{n'-1,n-1}]\sqrt{nn'}\,\rho_{n-1,n'-1}\} - \tag{6.40}$$

$$-\frac{1}{2}C(n+n')\rho_{n,n'} + C[(n-1)(n'+1)]^{1/2}\rho_{n+1,n'+1}$$

unde parametrul C se identifică cu lărgimea de bandă a cavității ($C = \omega/Q$) iar $n' - n = p$.

Ecuația (6.40) este fundamentală pentru teoria cuantică a laserilor, după cum se va arăta în cele ce urmează.

b) *Obținerea ecuației de mișcare prin metoda perturbațiilor.* Pentru intervale de timp T suficient de mici, variația definită de ecuația (6.7) poate fi calculată prin metoda perturbațiilor dependente de timp. Se arată că utilizarea acestei metode corespunde dezvoltării în serie a factorului exponențial Wigner-Weisskopf,

$$e^{-\gamma t} = 1 - \gamma t + \frac{\gamma^2}{2!}t^2 + \ldots \tag{6.41}$$

conducînd pentru intervale de timp care să asigure convergența seriei, prin calcule mai simple, la aceeași formă a ecuații de mișcare. Conform metodei perturbațiilor

$$\hat\rho_{CA}(t) = \hat\rho^{(0)}_{CA}(t) + \hat\rho^{(1)}_{CA}(t) + \hat\rho^{(2)}_{CA}(t) + \ldots \tag{6.42}$$

unde

$$\hat\rho^{n}_{CA}(t) = -i\int_{t_0}^{t}\hat V(t')\hat\rho^{(n-1)}_{CA}(t)\,dt' \tag{6.43}$$

$$(n = 1, 2, \ldots)$$

și

$$\hat\rho^{(0)}_{CA}(t_0) = \hat\rho_{CA}(t_0). \tag{6.44}$$

Ecuația de mișcare pentru operatorul densitate

$$\dot{\hat\rho}_{CA} = -i[(\hat H_0 + \hat V),\ \hat\rho_{CA}]$$

se scrie în formalismul de interacție sub forma

$$\hat\rho_{(I)CA} = -i[\hat V_I,\ \hat\rho_{(I)CA}] \tag{6.45}$$

unde

$$\hat V_I = e^{i\hat H_0 t}\hat V e^{-i\hat H_0 t} = g\, e^{i\omega\hat a^+\hat a t}(\hat a + \hat a^+)\, e^{-i\omega\hat a^+\hat a t}\times$$

$$\times\exp[i(\omega_a\hat\sigma_+\hat\sigma_- + \omega_b\hat\sigma_-\hat\sigma_+)t][\sigma_+ + \sigma_-]\times$$

$$\times\exp[-i\omega_a\hat\sigma_+\hat\sigma_- + \omega_b\hat\sigma_-\hat\sigma_+)t]. \tag{6.46}$$

În continuare, în aproximația undei rotitoare și la rezonanță, conform relației (6.21), $\hat{V}_I = \hat{V}'$. Evaluînd corecțiile de diferite ordine din dezvoltarea (6.42), conform ecuației integrale (6.43), se obțin relațiile [62]:

$$\hat{\rho}^{(1)}_{CA}(t) = -ig(t-t_0)\begin{bmatrix} 0 & -\hat{\rho}_0\hat{a} \\ \hat{a}^+\hat{\rho}_0 & 0 \end{bmatrix} \tag{6.47}$$

$$\hat{\rho}^{(2)}_{CA}(t) = \frac{(-ig)^2}{2!}(t-t_0)^2\begin{bmatrix} \hat{a}\hat{a}^+\hat{\rho}_0 + \hat{\rho}_0\hat{a}\hat{a}^+ & 0 \\ 0 & -2\hat{a}^+\hat{\rho}_0\hat{a} \end{bmatrix} \tag{6.48}$$

$$\hat{\rho}^{(3)}_{CA}(t) = \frac{(-ig)^3}{3!}(t-t_0)^3\begin{bmatrix} 0 & -\hat{\rho}_0\hat{a}\hat{a}^+\hat{a} - 3\hat{a}\hat{a}^+\hat{\rho}_0\hat{a} \\ \hat{a}^+\hat{a}\hat{a}^+\hat{\rho}_0 + 3\hat{a}^+\hat{\rho}_0\hat{a}\hat{a}^+ & 0 \end{bmatrix} \tag{6.49}$$

$$\hat{\rho}^{(4)}_{CA}(t) = \frac{(-ig)^4}{4!}(t-t_0)^4 \times$$
$$\times\begin{bmatrix} \hat{a}\hat{a}^+\hat{a}\hat{a}^+\hat{\rho}_0 + 6\hat{a}\hat{a}^+\hat{\rho}_0\hat{a}\hat{a}^+ + \hat{\rho}_0\hat{a}\hat{a}^+\hat{a}\hat{a}^+ & 0 \\ 0 & -4\hat{a}^+\hat{\rho}_0\hat{a}\hat{a}^+\hat{a} - 4\hat{a}^+\hat{a}\hat{a}^+\hat{\rho}_0\hat{a} \end{bmatrix} \tag{6.50}$$

$$\hat{\rho}^{(5)}_{CA}(t) = \ldots \tag{6.51}$$

Scrierea ecuației (6.39) implică calculul termenilor din partea dreaptă

$$\left(\frac{d\hat{\rho}}{dt}\right)_{cîștig} \quad \text{și} \quad \left(\frac{d\hat{\rho}}{dt}\right)_{pierderi}.$$

Se observă următoarele:

– $\left(\frac{d\hat{\rho}}{dt}\right)_{cîștig}$ este determinat de corecțiile pînă la ordinul patru, procesele de cîștig fiind neliniare;

– $\left(\frac{d\hat{\rho}}{dt}\right)_{pierderi}$ este determinat de corecția de ordinul al doilea, procesele de pierderi fiind liniare.

Ca urmare, ecuația (6.39) se scrie sub forma

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = -\frac{A}{2}(\hat{a}\hat{a}^+\hat{\rho} + \hat{\rho}\hat{a}\hat{a}^+ - 2\hat{a}^+\hat{\rho}\hat{a}) +$$
$$+\frac{B}{8}(\hat{a}\hat{a}^+\hat{a}\hat{a}^+\hat{\rho} + 6\hat{a}\hat{a}^+\hat{\rho}\hat{a}\hat{a}^+ + \hat{\rho}\hat{a}\hat{a}^+\hat{a}\hat{a}^+ - 4\hat{a}^+\hat{\rho}\hat{a}\hat{a}^+\hat{a} - 4\hat{a}^+\hat{a}\hat{a}^+\hat{\rho}\hat{a})$$
$$-\frac{C}{2}(\hat{a}^+\hat{a}\hat{\rho} + \hat{\rho}\hat{a}^+\hat{a} - 2\hat{a}\hat{\rho}\hat{a}^+) \tag{6.52}$$

unde
$$A = \lambda'_a g^2 T^2; \quad B = 8\lambda'_a g^4 T^4/4! \tag{6.53}$$

iar C a fost definit anterior.

Ecuația (6.52) este generală pentru orice reprezentare. În reprezentarea Fock, $\rho_{n,n'} = \langle n|\hat{\rho}|n'\rangle$, astfel încît (6.52) capătă forma *ecuației master a lui Pauli* (6.40), unde

$$R_{n,n'} = \frac{A}{2} - \frac{B}{8}[3(n'+1) + (n+1)]. \tag{6.54}$$

Se constată că $R_{n,n'}$, dat de ecuația (6.54) este o formă particulară a expresiei (6.36) stabilită anterior. (Se obține din aceasta, prin dezvoltare în serie, în raport cu $1/\gamma$, pentru $T = \frac{1}{\gamma}$, $\Delta = 0$ și $\gamma_{ab} = \gamma_a = \gamma_b = \gamma$).

6.2.4. Analiza ecuației de mișcare

Ecuația de mișcare (6.40) cuplează numai elemente ale matricei densitate cu același grad de „nediagonalitate'' ($p = n - n'$), adică cuplarea se produce după linii paralele cu diagonala principală, fapt care exprimă un grad ridicat de decuplare, prin absența cuplării între elemente cu grade diferite p. Astfel dacă ρ este o matrice diagonală va rămîne diagonală și în timp evoluției; de asemenea, elementele de tipul $\rho_{n,n\pm1}$ evoluează independent de elementele diagonale $\rho_{n,n}$.

a) *Studiul elementelor diagonale*. Elementele diagonale ale ecuației (6.40) obținute din condiția $p = 0$ au forma

$$\dot{\rho}_{n,n} = -A(n+1)[1+(n+1)(B/A)]^{-1}\rho_{n,n} + + An[1+n(B/A)]^{-1}\rho_{n-1,n-1} - Cn\rho_{n,n} + C(n+1)\rho_{n+1,n+1} \quad (6.55)$$

unde expresiile coeficienților A, B și C diferă de (6.53) datorită utilizării expresiei (6.36) în loc de expresia (6.54) a lui $R_{n,n'}$. Se arată ușor că

$$A = 2\lambda_a' g^2/(\gamma_a\gamma_{ab}); \quad B = 8\lambda_a' g^4/(\gamma_a^2\gamma_b\gamma_{ab}); \quad C = \omega/Q. \quad (6.56)$$

Ecuația (6.55) descriind un bilanț de probabilitate este o ecuație de tip master după cum s-a mai menționat. Bilanțul detaliat de probabilități

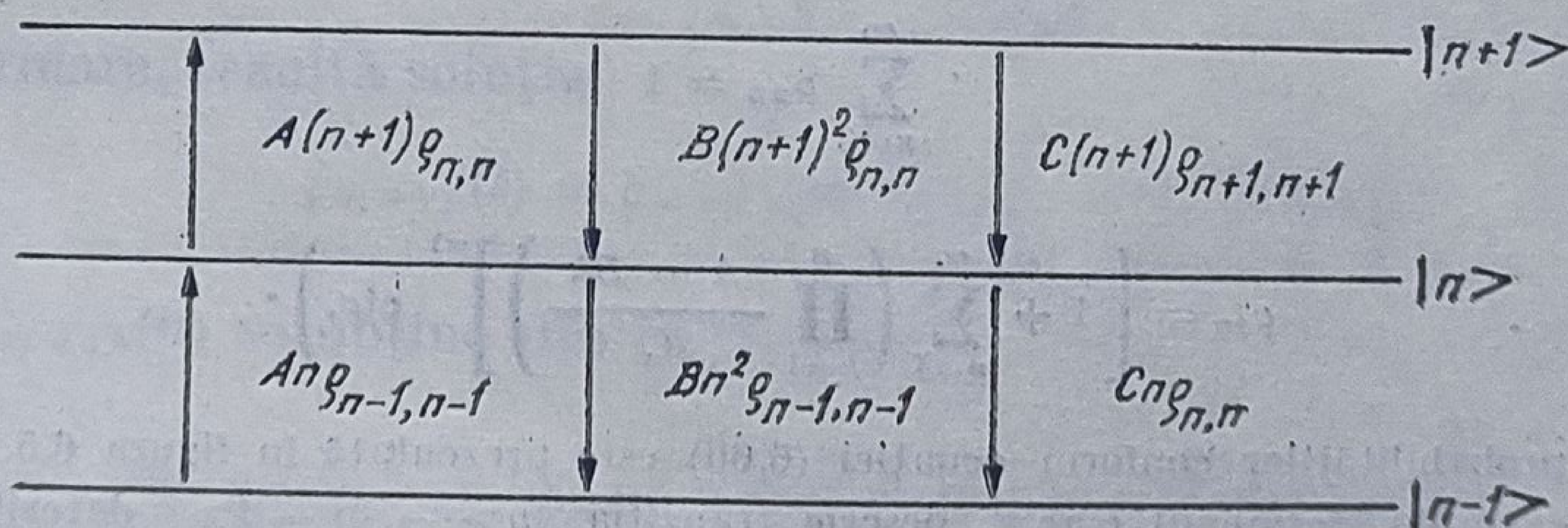


Fig. 6.5

corespunzător oscilației unui laser cu n fotoni este prezentat în fig. 6.4 și se obține considerînd soluția de regim staționar a ecuației (6.55) Astfel pentru $\dot{\rho}_{n,n} = 0$, ecuația (6.55) este echivalentă cu următoarele două sisteme de ecuații cu diferențe finite, între perechi de nivele adiacente

$$An[1+(B/A)n]^{-1}\rho_{n-1,n-1} - Cn\rho_{n,n} = 0 \quad (6.57)$$

$$A(n+1)[1+(B/A)(n+1)]^{-1}\rho_{n,n} - C(n-1)\rho_{n+1,n+1} = 0 \quad (6.58)$$

ale căror soluții au forma

$$\rho_{n,n} = \mathcal{N}\prod_{k=1}^{n}(A/C)[1+(B/A)k]^{-1} \quad (6.59)$$

$\mathcal{N}$ fiind o constantă de normare.

În aproximaţia liniară, $B = 0$, astfel că ecuaţiile (6.57) şi (6.58) se simplifică corespunzător.

Dacă reţinem în ecuaţia (6.55) numai termenii de primul ordin în B/A, se obţine ecuaţia mai simplă pentru rata fotonilor

$$\dot{\rho}_{n,n} = -[A - B(n+1)](n+1)_{n,n} + [A - Bn]\,n\rho_{n+1,\,n+1} - Cn\rho_{n,n} + C(n+1)_{n+1,\,n+1} \qquad (6.60)$$

care admite soluţia de regim staţionar

$$\rho_{n,n} = \mathcal{N}' \prod_{k=1}^{n} \frac{A - Bk}{C} \qquad (6.61)$$

unde $\mathcal{N}'$ este o constantă de normare.

(*Observaţie*. Soluţia (6.64) ca şi (6.59) se obţine prin recurenţă. Astfel, rezultă mai întîi

$$\rho_{n+1,\,n+1} = \frac{[A - B(n+1)]\,\rho_{nn}}{C}. \qquad (6.62)$$

Prin urmare

$$\rho_{11} = C^{-1}(A - B)\,\rho_{00} \qquad (6.63)$$

$$\rho_{22} = C^{-1}(A - 2B)\rho_{11} \qquad (6.64)$$

$$\rho_{n,n} = \left(\prod_{k=1}^{n} \frac{A - kB}{C}\right)\rho_{00} \qquad (6.65)$$

unde din condiţia de normare

$$\sum_{n=0}^{\infty} \rho_{nn} = 1 \qquad (6.66)$$

se obţine

$$\rho_{00} = \left[1 + \sum_{n=1}^{\infty}\left(\prod_{k=1}^{n} \frac{A - Bk}{C}\right)\right]^{-1} \text{etc.}). \qquad (6.67)$$

Diagrama probabilităţilor conform ecuaţiei (6.60) este prezentată în figura 6.5.

De exemplu, termenul $Cn\rho_{n,n}$ descrie tranziţia $|n\rangle \to |n-1\rangle$ datorită absorbţiei unui foton; în mod asemănător termenul $[A - B(n+1)](n+1)\rho$ descrie tranziţia $|n\rangle \to |n+1\rangle$ datorită emisiei unui foton etc.

Dacă condiţia de regim staţionar $\rho_{nn} = 0$ nu este îndeplinită (regim tranzitoriu), se caută pentru elementele de matrice diagonale soluţii de forma

$$\rho_{nn}(t) = \varphi(n)\,e^{-\mu t} \qquad (6.68)$$

care introduse în ecuaţia de mişcare (6.55) conduce la următorul sistem infinit de ecuaţii liniare omogene.

$$a_{n;\,n-1}\varphi(n-1) + (a_{nn} + \mu)\,\varphi(n) + a_{n,\,n+1}\,\varphi(n+1) = 0; \quad n = 1, 2, \ldots \qquad (6.69)$$

care admite soluţii nebanale dacă $\mu_k \geqslant 0$, soluţia $\mu_0 = 0$ corespunzînd regimului staţionar. Forma generală a soluţiei dependente de timp pentru elementele diagonale este următoarea

$$\rho_{nn}(t) = \sum_{k=0}^{\infty} \varphi_k(n)\,e^{-\mu_k t}. \qquad (6.70)$$

În aproximaţia liniară, $B = 0$, astfel că ecuaţiile (6.57) şi (6.58) se simplifică corespunzător.

Dacă reţinem în ecuaţia (6.55) numai termenii de primul ordin în B/A, se obţine ecuaţia mai simplă pentru rata fotonilor

$$\dot{\rho}_{n,n} = -[A - B(n+1)](n+1)_{n,n} + [A - Bn]n\rho_{n+1,n+1} \tag{6.60}$$

$$- Cn\rho_{n,n} + C(n+1)_{n+1,n+1}$$

care admite soluţia de regim staţionar

$$\rho_{n,n} = \mathcal{N}' \prod_{k=1}^{n} \frac{A - Bk}{C} \tag{6.61}$$

unde $\mathcal{N}'$ este o constantă de normare.

(*Observaţie*. Soluţia (6.64) ca şi (6.59) se obţine prin recurenţă. Astfel, rezultă mai întîi

$$\rho_{n+1,n+1} = \frac{[A - B(n+1)]\rho_{nn}}{C}. \tag{6.62}$$

Prin urmare

$$\rho_{11} = C^{-1}(A - B)\rho_{00} \tag{6.63}$$

$$\rho_{22} = C^{-1}(A - 2B)\rho_{11} \tag{6.64}$$

$$\rho_{n,n} = \left(\prod_{k=1}^{n} \frac{A - kB}{C} \right) \rho_{00} \tag{6.65}$$

unde din condiţia de normare

$$\sum_{n=0}^{\infty} \rho_{nn} = 1 \tag{6.66}$$

se obţine

$$\rho_{00} = \left[1 + \sum_{n=1}^{\infty} \left(\prod_{k=1}^{n} \frac{A - Bk}{C} \right) \right]^{-1} \text{etc.}). \tag{6.67}$$

Diagrama probabilităţilor conform ecuaţiei (6.60) este prezentată în figura 6.5.

De exemplu, termenul $Cn\rho_{n,n}$ descrie tranziţia $|n> \to |n-1>$ datorită absorbţiei unui foton; în mod asemănător termenul $[A - B(n+1)](n+1)\rho$ descrie tranziţia $|n> \to |n+1>$ datorită emisiei unui foton etc.

Dacă condiţia de regim staţionar $\dot{\rho}_{nn} = 0$ nu este îndeplinită (regim tranzitoriu), se caută pentru elementele de matrice diagonale soluţii de forma

$$\rho_{n_0 n}(t) = \varphi(n)\, e^{-\mu t} \tag{6.68}$$

care introduse în ecuaţia de mişcare (6.55) conduce la următorul sistem infinit de ecuaţii liniare omogene.

$$a_{n;n-1}\varphi(n-1) + (a_{n_0 n} + \mu)\,\varphi(n) + a_{n_0 n+1}\,\varphi(n+1) = 0; \quad n = 1, 2, \ldots \tag{6.69}$$

care admite soluţii nebanale dacă $\mu_k \geqslant 0$, soluţia $\mu_0 = 0$ corespunzind regimului staţionar. Forma generală a soluţiei dependente de timp pentru elementele diagonale este următoarea

$$\rho_{n_0 n}(t) = \sum_{k=0}^{\infty} \varphi_k(n)\, e^{-\mu_k t}. \tag{6.70}$$

b) *Studiul elementelor nediagonale.* Elementele nediagonale ale ecuației (6.40) se obțin pentru $p \neq 0$ sub forma

$$\dot{\rho}_{n,\,n+p} = -\frac{B}{8}\,p^2\rho_{n,\,n+p} - \left[A - B\left(n+1+\frac{p}{2}\right)\right]\left(n+1+\frac{p}{2}\right)\rho_{n,\,n+p} +$$

$$+\left[A - B\left(n+\frac{p}{2}\right)\right]\sqrt{n(n+p)}\;\rho_{n-1,\,n-1+p} - C\left(n+\frac{p}{2}\right)\rho_{n,\,n+p} +$$

$$+C\sqrt{(n+1)(n+1+p)}\;\rho_{n+1,\,n+1+p}. \tag{6.71}$$

Prin extinderea soluției (6.70) la elementele nediagonale se poate scrie

$$\rho_{n,\,n+p}(t) = \sum_{k=0}^{\infty} \varphi_k(n,p)\exp\left[-\mu_k^{(p)}(t)\right] \tag{6.72}$$

unde $\mu_k^{(p)}(p) > 0$, astfel că termenii nediagonali tind spre zero pentru intervale de timp suficient de mari.

Pentru elemente situate în apropierea diagonalei principale (p mic), se poate aprecia, mult peste prag, că valorile proprii $\mu_k^{(p)}$ sînt mici astfel încît prin analogie cu soluțiile (6.60) se caută soluții de forma

$$\rho_{n,\,n+p}(t) = \mathcal{N}_p\left\{\prod_{l=0}^{n}\left[\frac{A-Bl}{C}\right]\prod_{m=0}^{n+p}\left[\frac{A-Bm}{C}\right]\right\}^{1/2}\exp\left[\mu_0^{(p)}(t)\right], \tag{6.73}$$

care implică pentru valorile proprii $\mu_0^{(p)}$ expresiile

$$\mu_0^{(p)} = \frac{1}{2}Dp^2 \tag{6.74}$$

unde

$$D = \frac{C}{2\langle n\rangle} = \frac{\omega}{2Q\langle n\rangle}. \tag{6.75}$$

Prin urmare, rezultă soluția

$$\rho_{n,\,n+p}(t) = \rho_{n,\,n+p}(0)\exp\left[-\frac{1}{2}p^2Dt\right] \tag{6.76}$$

unde $\rho_{n;\,n+p}(0)$ se obține din (6.73) pentru $t = 0$.

6.2.5. Rezultate ale formalismului matricei densitate

Din analiza soluțiilor ecuației de mișcare pentru matricea densitate, stabilită în paragraful anterior, se obțin principalele rezultate ale teoriei cuantice care se referă, după cum s-a menționat în § 6.1, la : statisticile de fotoni, amorsarea oscilației din vid și lărgimea intrinsecă a liniei laser.

a) *Statisticile de fotoni.* Se referă la numărul de fotoni pe mod, pentru fiecare din cele trei regimuri caracteristice de operare : sub prag ($A < C$), la pragul de oscilație ($A = C$) și peste prag ($A > C$).

Pragul de oscilație este definit de condiția $A = C$ întrucît din expresiile (6.56) ale constantelor A și C rezultă

$$\bar{N}_a = \frac{\varepsilon_0 \hbar \gamma_{ab}}{d^2 Q} \tag{6.77}$$

adică expresia (5.68) a inversiei critice din teoria semicuantică.

I. *Sub prag* ($A < C$). Întrucît în această regiune de operare, termenii neliniari pot fi neglijaţi ($B = 0$), soluţia (6.59) în aproximaţia liniară are forma

$$\rho_{n,n} = [1 - (A/C)]\cdot(A/C)^n. \qquad (6.78)$$

fiind o funcţie rapid descrescătoare cu numărul de fotoni (fig. 6.6, curba *I*)

Dacă definim temperatura efectivă, T, a radiaţiei termice prin relaţia

$$\exp\left[-\frac{\hbar\omega}{kT}\right] = \frac{A}{C} \qquad (6.79)$$

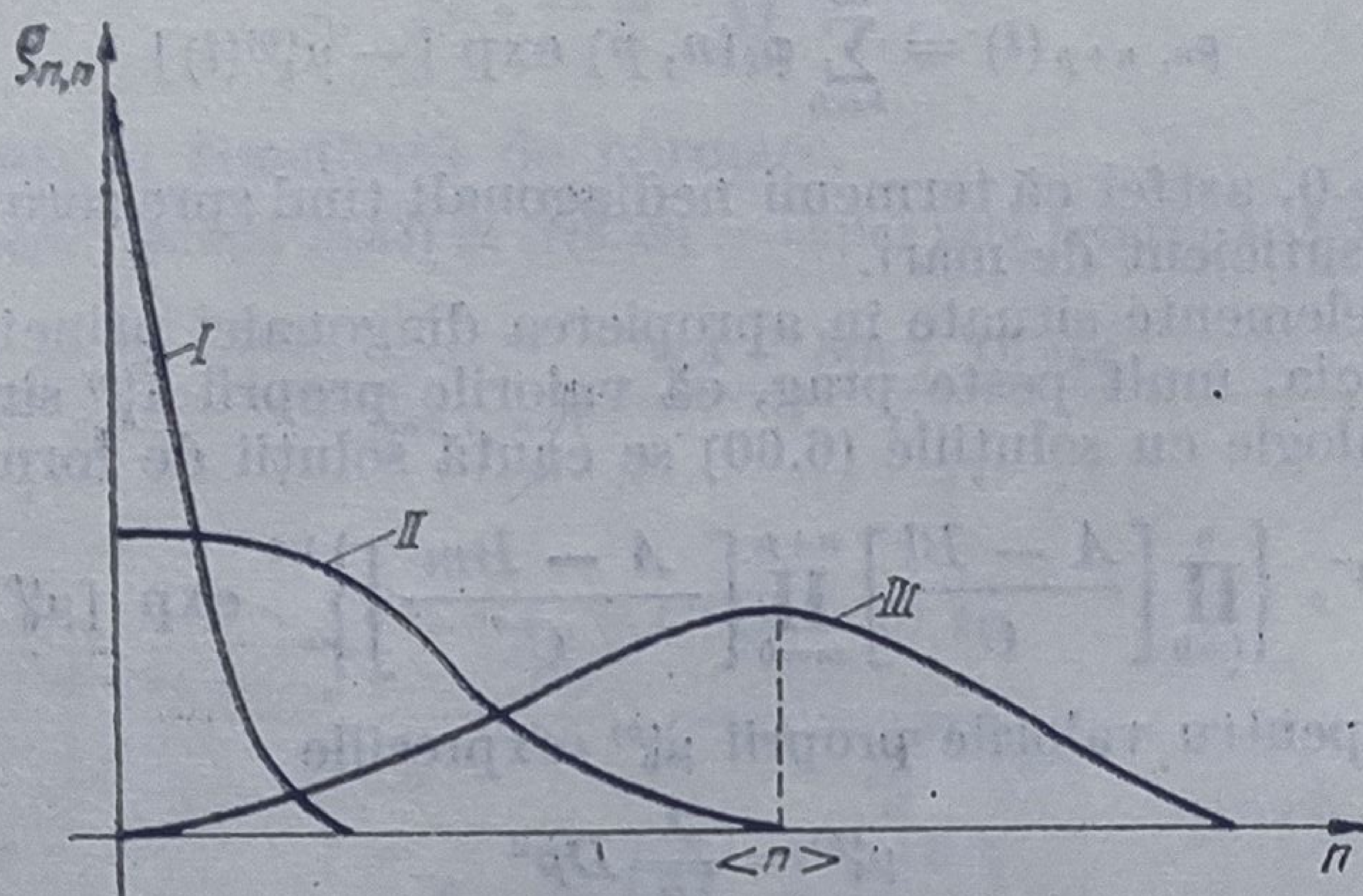


Fig. 6.6.

din (6.78) se obţine

$$\rho_{n,n} = \left\{1 - \exp\left[-\frac{\hbar\omega}{kT}\right]\right\}\exp\left[-\frac{n\hbar\omega}{kT}\right] \qquad (6.80)$$

adică sub prag *statistica fotonilor este cea a radiaţiei termice*.

II. *La prag* ($A = C$). La pragul de oscilaţie şi peste prag se analizează soluţia (6.61) în aproximaţia neliniară ($B \neq 0$).

La prag, se observă că

$$\frac{A - Bk}{C} = 1 - \frac{B}{A}k < 1 \quad \text{pentru} \quad k > 0. \qquad (6.81)$$

Prin urmare, probabilitatea maximă este ρ_{00}, se obţine pentru $n = 0$ şi are o descreştere gaussiană pentru $n > 0$ (fig. 6.6, curba *II*).

III. *Peste prag* ($A > C$). Soluţia (6.61) este în acest caz un produs de $(n + 1)$ factori de forma $f_k = \dfrac{A - Bk}{C}$. Dacă definim numărul de fotoni la regim staţionar prin $\bar{n} = \dfrac{A - C}{B}$ (cîştigul este compensat de pierderi) se observă că $f_k > 1$ pentru $k < \bar{n}$ şi $f_k < 1$ pentru $k > \bar{n}$. Prin urmare, $\rho_{n,n}$ creşte odată cu n pentru $n < \bar{n}$ şi scade cu n peste $n > \bar{n}$, avînd un maxim pentru $n = \bar{n}$ (fig. 6.6, curba *III*).

O privire comparativă a statisticilor de fotoni pentru radiația laser peste prag și cea a unui laser ideal (adică aflat într-o stare coerentă cu aceeași valoare medie a numărului de fotoni $\langle n \rangle$ este prezentată în fig. 6.7. Se constată că distribuția de fotoni a laserului ideal are un maxim mai pronunțat.

Pentru o distribuție peste prag, suficient de pronunțată se poate scrie

$$\langle n \rangle \simeq \bar{n} = \frac{A}{C}\left(\frac{A-C}{B}\right). \tag{6.82}$$

Întrucît numărul mediu de fotoni $\langle n \rangle$ este o măsură a intensității cîmpului rezultă conform teoriei semicuantice

$$\langle n \rangle \simeq \frac{\textit{cîștigul — pierderile}}{\textit{parametrul de saturație}}. \tag{6.83}$$

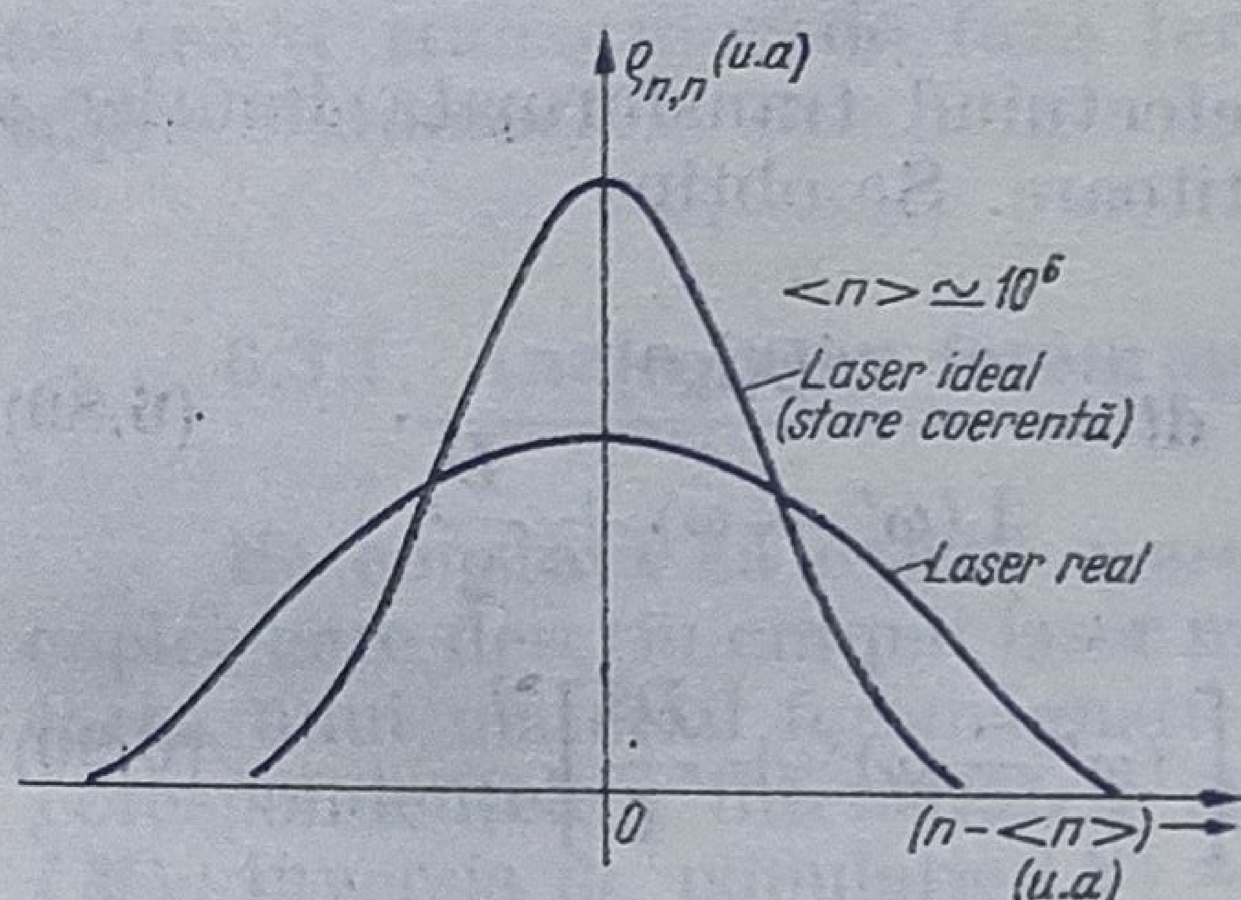


Fig. 6.7

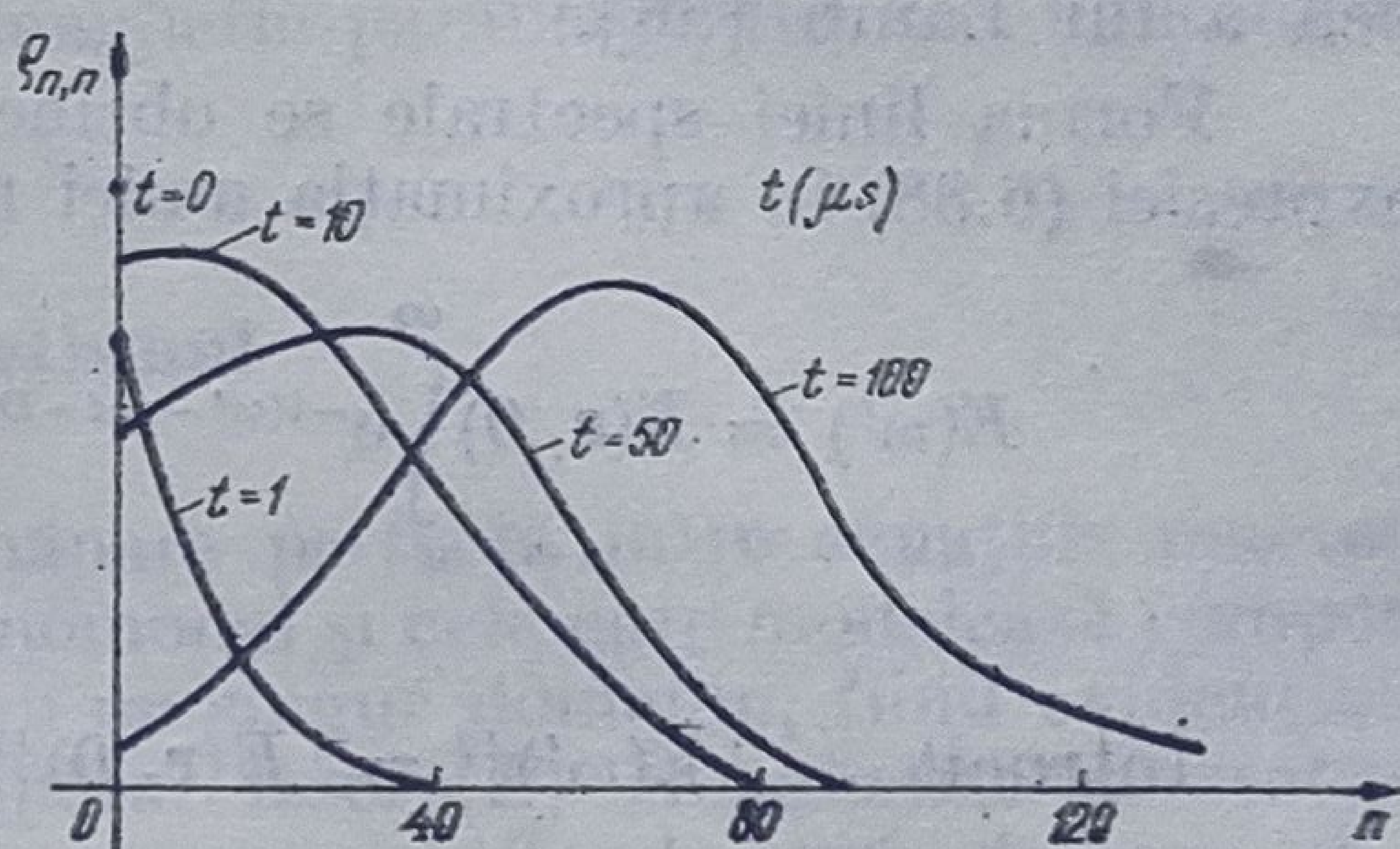


Fig. 6.8

Cele două expresii de mai sus ale lui $\langle n \rangle$ oferă posibilitatea interpretării constantelor $A - C$ și B pe baza relațiilor

$$A - C = 2\alpha \tag{6.84}$$

$$B \sim \beta \tag{6.85}$$

unde α și β sînt factorii de cîștig și de saturație, avînd expresiile (5.122) și (5.123).

Dacă se utilizează soluția (6.61), pentru un regim de operare *mult peste prag* se obține

$$\langle n \rangle \simeq A^2/(BC). \tag{6.86}$$

În acest caz, în condiții ușor de satisfăcut,

$$\rho_{n,n} \simeq \mathcal{N}' \frac{\langle n \rangle^n}{n!} = \exp(-\langle n \rangle) \frac{\langle n \rangle^n}{n!}, \tag{6.87}$$

adică se obține distribuția Poisson, statistica fotonilor mult peste prag apropriindu-se de cea a unei stări coerente.

b) *Amorsarea oscilației din vid.* Din analiza soluției (6.70) rezultă curbele $\rho_{n,n} = gf(n)$, avînd ca parametru timpul, trasate în fig. 6.8. Timpul de regim tranzitoriu determinat de factorul $\dfrac{1}{A - \omega/Q}$, adică de constanta de timp de creștere exponențială în aproximația liniară este pentru parametrii obișnuiți ai dispozitivelor laser, de zeci de μs.

c) *Lărgimea intrinsecă a liniei laser.* Proprietățile spectrale ale liniei laser sînt incluse în soluțiile dependente de timp (6.74) ale elementelor nediagonale ale matricei densitate și pot fi evidențiate, investigînd valoarea medie a cîmpului laser. Altă cale utilizabilă în acest scop constă în folosirea funcției de corelație $G^{(1,1)}(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}, t+\tau)$ a cîmpului.

Ținînd seama de expresia (6.74) a elementului de matrice $\rho_{n, n+p}(t)$ se obține pentru valoarea medie a cîmpului electric expresia.

$$\langle E(\mathbf{r}, t)\rangle = \langle E(\mathbf{r}, 0)\rangle \, e^{-Dt/2} \cos \omega t. \tag{6.88}$$

(Deși peste prag amplitudinea este stabilizată, faza este nestabilizată astfel încît atenuarea valorii medii rezultă din procesele de difuzie a fazei. Faza evoluează diferit pentru diferite elemente ale ansamblului datorită zgomotului produs de emisia spontană și a zgomotului termic. Semnificația lui D ca *factor de difuzie a fazei* este evidențiată în teoria semicuantică a lui Lamb [86].)

Forma liniei spectrale se obține efectuînd transformata Fourier a expresiei (6.88) în aproximația undei rotitoare. Se obține

$$E(\omega') = E(\mathbf{r}, 0) \int_0^\infty e^{-i(\omega'-\omega)t - D/2t} \, dt = \frac{E(\mathbf{r},0)}{i(\omega'-\omega) + \frac{D}{2}}. \tag{6.89}$$

Întrucît $$|E(\omega')|^2 = |E(\mathbf{r}, 0)|^2 \cdot \left[(\omega'-\omega)^2 + \frac{D^2}{4} \right]^{-1} \tag{6.90}$$

rezultă că profilul liniei este lorentzian, avînd lărgimea intrinsecă D dată de relația (6.75), la semiînălțime, în jurul frecvenței modului ω. Întrucît lărgimea modului cavității este $\Delta\Omega = \frac{\omega}{Q}$ se poate scrie

$$\frac{D}{\Delta\Omega} = \frac{1}{2\langle n\rangle} \tag{6.91}$$

astfel încît lărgimea liniei este redusă cu factorul $1/2\langle n\rangle$ în raport cu lărgimea modului cavității pasive. Întrucît $\langle n\rangle$ este determinat de raportul dintre rata emisiei induse către rata emisiei spontane rezultă rolul emisiei spontane ca sursă de zgomot.

(Pentru un laser tipic cu gaz $D \sim 10^{-3}$ Hz, ceea ce reflectă un înalt grad de monocromaticitate, avînd în vedere frecvența optică ridicată).

În realitate o serie de factori, cum ar fi vibrațiile oglinzilor etc., fac ca lărgimea liniei să crească cu mai multe ordine de mărime (aproximativ 10^6 Hz pentru tranziția $2s \to 2p$ a unui laser cu gaz cu He-Ne (lărgimea naturală) și cam 10^9 Hz lărgimea Doppler).

Observație.

— Dacă se exprimă factorul de difuzie a fazei funcție de puterea laser pentru un laser tipic se obține

$$D_{cuantic} = \frac{\hbar\omega}{2P} (\Delta\Omega)^2 = 2D_{semicuantic} \tag{6.92}$$

rezultat care evidențiază o dublare a lărgimii liniei cuantice datorită zgomotului emisiei spontane. În calculul semicuantic al lărgimii liniei se iau în considerare fluctuațiile de zero și zgomotul termic, nefiind posibilă considerarea emisiei spontane).

— Folosirea transformatei Fourier a funcției de coerență $G^{(1,1)}(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}, t+\tau)$ pentru evaluarea spectrului este utilă în special în cazul staționar cînd ρ este diagonal și $\langle E \rangle = 0$.

În acest caz, după evaluarea operatorilor dependenți de timp $\hat{a}(t)$, cu ajutorul operatorului densitate redus, este suficient să se evalueze expresia $\mathrm{Urm}\,[\hat{\rho}(0)\hat{a}^{+}(0)\hat{a}(t)]$.

6.3. Fenomenul laser ca tranziție de fază

Comportarea dispozitivului laser la prag descrisă de teoria cuantică poate fi analizată prin analogie cu tranzițiile de fază de speța a doua.

În cele ce urmează se va discuta această comportare în comparație cu cea a tranzițiilor de fază feromagnetic-paramagnetic sau conductor-supraconductor.

6.3.1. Analogia cu feromagnetismul

Se constată că există o asemănare perfectă între ecuațiile macroscopice care descriu cîmpul laser monomodal și cele care modelează comportarea unui material feromagnetic cu un singur domeniu, fiind evidențiate corespondențele : intensitatea cîmpului laser (E) →magnetizarea statică (M) ; inversia de populație (N) → temperatura (T) ; inversia de prag (N_p) temperatura Curie (T_c) etc.

Menționăm că E, respectiv M, descriu parametrii de ordine în tranzițiile de fază corespunzătoare, iar N, respectiv T, sînt variabile care descriu interacția sistemului cu rezervorul de pompaj în cazul laserilor sau cu termostatul în cazul feromagneților. Teoria poate fi extinsă pentru cazul unui laser multimodal care corespunde unui sistem magnetic neomogen spațial. Mergîndu-se mai departe cu analogia, semnalul de injecție în cazul laserilor corespunde cîmpului magnetic extern aplicat, în cazul feromagnetismului.

O prezentare mai completă a analogiilor discutate este prezentată în tabelul 6.2 [62].

Distribuția $P(\alpha, t)$ a cîmpului reprezintă o cvasiprobabilitate și se obține în cazul considerării fluctuațiilor ca soluție a ecuației (6.39), scrisă în reprezentarea stărilor coerente (ecuația Fokker-Planck), $P(\alpha, t)$ fiind definit prin

$$\rho(\hat{a}, \hat{a}^{+}, t) = \int P(\alpha, t) |\alpha\rangle \langle\alpha| \, \mathrm{d}^2\alpha. \qquad (6.93)$$

În cazul în care se introduc notațiile

$x = (1/2)[\alpha + \alpha^*]$ și $y = (1/2\mathrm{i})\ [\alpha - \alpha^*]$, se obține

$$P(x, y) = \mathcal{N}(\exp[-G(x, y)/KN] \qquad (6.94)$$

unde $\mathcal{N}$ este o constantă de normare, K este un factor proporțional cu cîștigul per atom, $G(x, y)$ potențialul termodinamic corespunzător energiei libere iar N inversia de populație.

6.3.2. Analogia cu supraconductivitatea

Pentru evidenţierea acestei analogii se utilizează ecuaţia Fokker-Planck verificată de funcţia de distribuţie $[E(x) = E^{+}(x) + E^{-}(x)]$

$$\mathscr{P}(u, u^{*}) = \mathscr{N} \exp([-G/Q_0] \tag{6.95}$$

unde amplitudinea $u(x)$ corespunde părţii cu frecvenţă pozitivă a operatorului de cîmp cuantic $E^{+}(x)$, iar Q_0 este definit prin

$$Q(x, x') \simeq Q_0 \delta(x - x'), \tag{6.96}$$

$Q(x, x')$ fiind coeficientul de difuzie, iar $\mathscr{N}$ un factor de normare.

Corespondenţa dintre mărimile care intervin în descrierea laserului şi a supraconductivităţii ca tranziţii de fază este prezentată în tabelul 6.3[62].

Tabelul 6.2

Mărimi caracteristice	Laser	Material feromagnetic
Parametrul de ordine	**E** — intensitatea cîmpului laser	**M** — magnetizarea
Variabile ale rezervorului	N — inversia de populaţie N_p — inversia de prag	T — temperatura T_c — temperatura Curie
Curba caracteristică	$E = \begin{cases} 0, & N < N_p \\ \dfrac{a}{b}\left[\dfrac{N - N_p}{N}\right]^{1/2}, & N > N_p \end{cases}$ a, b — coeficienţi specifici	$M = \begin{cases} 0, & T > T_c \\ \dfrac{\tilde{a}}{\tilde{b}}\left[\dfrac{T - T_p}{T}\right]^{1/2}, & T < T_c \end{cases}$ $\tilde{a}, \tilde{b}$-coeficienţi specifici
Parametrul de modificare a ordinii	S_0 — semnalul injectat din exterior	H_0 — cîmpul magnetic exterior
Valoarea parametrului de ordine în punctul critic	$E = \left[\dfrac{2S_0}{bN_p}\right]^{1/3}$	$M = \left[\dfrac{H_0}{\tilde{b}\, T_c}\right]^{1/3}$
Potenţialul termodinamic (energia liberă)	$G(x, y) = -\dfrac{1}{4} a(N - N_p) \cdot (x^2 + y^2) + \dfrac{1}{8} bN(x^2 + y^2)^2 - S_0 x + G_0$	$F(M) = \dfrac{1}{2}\tilde{a}(T - T_c)M^2 + \dfrac{1}{4}\tilde{b}\, TM^4 - H_0 M + F_0$
Distribuţia statistică	$P(E) = \mathscr{N} \exp\left[-\dfrac{G(E)}{KN}\right]$	$P(M) = \tilde{\mathscr{N}} \exp\left[\dfrac{-F(M)}{kT}\right]$

Saltul care apare la prag în mărimea puterii laser de ieșire, caracteristic tranzițiilor de fază de speță a doua, nu este foarte brusc datorită fluctuațiilor cuantice.

Tabelul 6.3

Mărimi caracteristice	Laser	Material supraconductor
Parametrul de ordine	$u(x)$ — amplitudinea cîmpului (model unidimensional)	ψ-funcția de undă a perechilor în teoria BCS
Variabile ale rezervorului	N- inversia de populație per atom N_p — inversia de populație per atom la prag	T — temperatura T_c — temperatura critică
Potențialul termodinamic (energia liberă)	$G(N, u) = \underbrace{G_0(N)}_{=0} + \alpha(N)u^2 + \beta u^4$ $\alpha(N) = a(N_p - N)$ a, α, β — coeficienți specifici	$F(T, \psi) = F_0(T) + \tilde{\alpha}(T)\psi^2 + \tilde{\beta}\psi^4$ $\tilde{\alpha}(T) = \tilde{a}(T - T_c)$ $\tilde{a}, \tilde{\alpha}, \tilde{\beta}$ — coeficienți specifici
Entropia (continuă în punctul de tranziție)	$S = -\dfrac{\partial G}{\partial N}$ $S = \begin{cases} S_0, \text{ faza neordonată} \\ S_0 + \dfrac{a^2}{2\beta}(N_p - N), \end{cases}$ faza ordonată	$S = -\dfrac{\partial F}{\partial T}$ $S = \begin{cases} S_0, \text{ faza neordonată} \\ S_0 + \dfrac{\tilde{a}^2}{2\tilde{\beta}}(T - T_c), \end{cases}$ faza ordonată
Călduri specifice (discontinue în punctul de tranziție)	$C = N\left(\dfrac{\partial S}{\partial N}\right) =$ $= \begin{cases} N\dfrac{\partial S_0}{\partial N}, \text{ faza neordonată} \\ N\dfrac{\partial S_0}{\partial N} - \dfrac{a^2}{2\beta}N_p, \end{cases}$ faza ordonată	$C = T\left(\dfrac{\partial S}{\partial T}\right) =$ $= \begin{cases} T\dfrac{\partial S_0}{\partial T}, \text{ faza neordonată} \\ T\dfrac{\partial S_0}{\partial T} + \dfrac{\tilde{a}^2}{2\tilde{\beta}}T_c, \end{cases}$ faza ordonată

7. FENOMENE OPTICE COOPERATIVE

7.1. Introducere

Fenomenele optice cooperative sînt efecte de *interacție coerentă*, care caracterizează sistemul cîmp de radiație — mediu atomic și aparțin opticii cuantice.

Problemele neliniare specifice acestei categorii de fenomene sînt de tip *laser* sau sînt determinate de *generarea și propagarea impulsurilor intense de radiație în medii rezonante*.

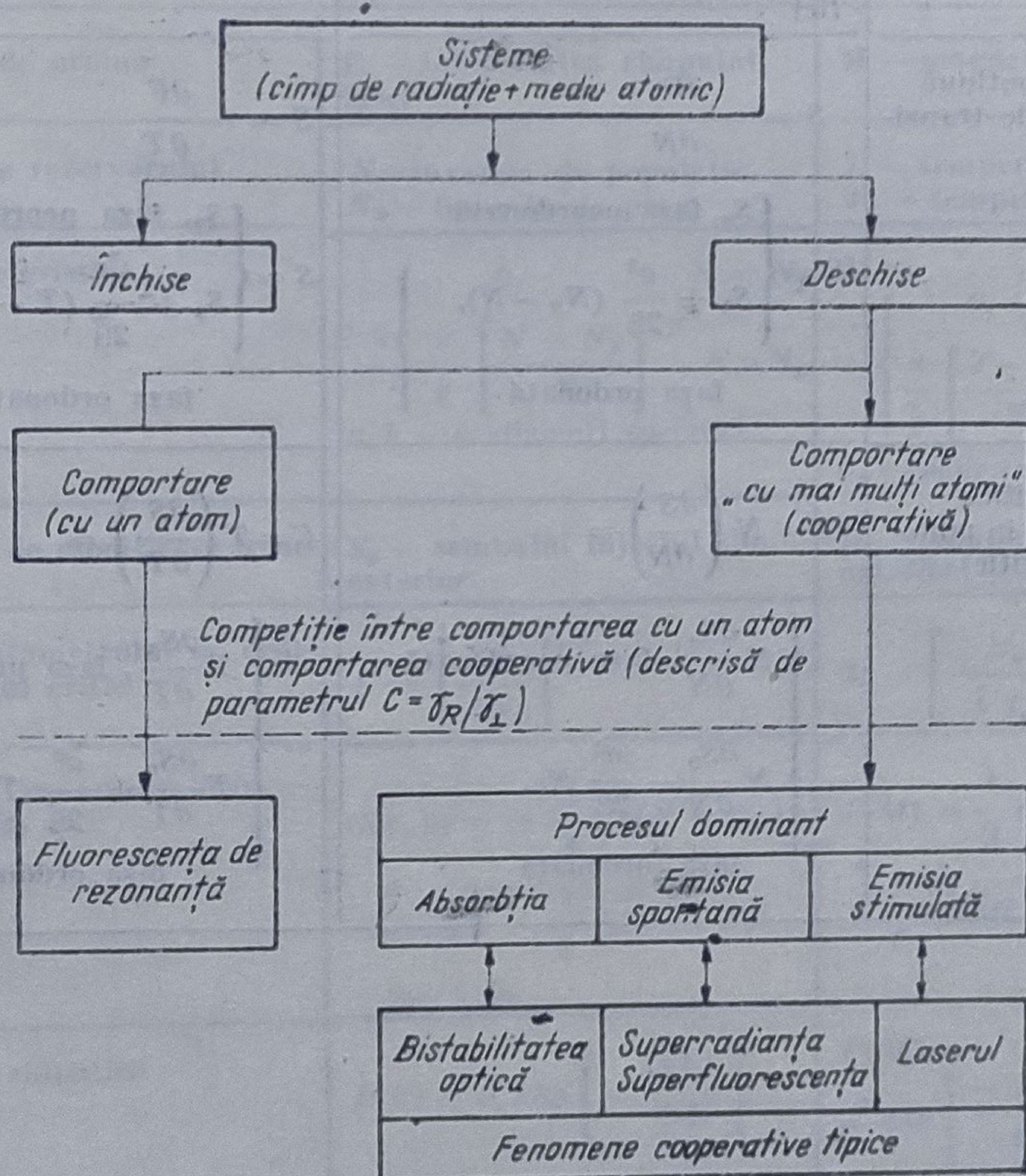


Fig. 7.1

În general, sistemul cîmp de radțiație — mediu atomic este un *sistem deschis* în care pot avea loc tranziții de fază, dar *departe de echilibrul* termodinamic.

Dacă *tăria interacției* într-un astfel de sistem este caracterizată de parametrul λ, atunci pentru λ mic neliniaritățile sînt mici și sistemul este în cvasiechilibru.

O dată cu creșterea lui λ sistemul se dezechilibrează și în comportarea sa apar „bifurcații'' succesive. De exemplu, sistemul poate suferi o tranziție de fază (de speța întîi sau a doua) într-o nouă stare stabilă, poate autooscila, ca urmare a autoorganizării (starea sistemului în spațiul fazelor nu mai este reprezentată de un punct ci de un ciclu limită) sau poate intra într-o stare de haos (comportare total neperiodică).

O schemă simplificată a principalelor tipuri de interacții cîmp de radiație-sistem atomic este prezentată în figura 7.1.

Procesele de coerență care caracterizează aceste interacții pot fi de coerență optică, de coerență atomică, sau pot apare ca rezultat al ambelor tipuri de coerență. Coerența optică a fost studiată în capitolul 2 al lucrării. În acest capitol se va analiza îmai întîi conceptul de coerență atomică, determinat de comportarea colectivă a atomilor, ca un singur sistem cuantic, urmînd ca acest concept să fie utilizat pentru studiul fenomenelor optice cooperative, corelate cu acest tip de coerență.

Analogia cu tranzițiile de fază va fi, de asemenea, evidențiată, ca o limită termodinamică a acestor comportări.

7.2. Stările atomice Dicke și stările atomice coerente

7.2.1. Stările atomice Dicke

Prin analogie cu teoria semicuantică a laserilor se va analiza modelul unui sistem atomic cu două nivele (fig. 1.6), admițîndu-se absența interacțiilor directe dintre atomi.

Totuși, întrucît radiația emisă de către atomi este afectată puternic de prezența altor atomi, trebuie luată în considerare interacția indirectă a atomilor prin intermediul cîmpului de radiație. Pentru descrierea acestui tip de interacție cîmpul de radiației care se propagă în direcția z se consideră circular polarizat astfel că se poate scrie

$$E_{\pm} = E_x \pm \mathrm{i}E_y. \tag{7.1}$$

Dacă operatorul tranziției de dipol electric $\hat{p}(\hat{p} = d\hat{\sigma}_1)$ se exprima în mod asemănător prin expresia

$$\hat{p}^{\pm} = \hat{p}_x \pm \mathrm{i}\hat{p}_y = e(\hat{x} \pm i\hat{y}), \tag{7.2}$$

termenul de interacție al hamiltonainului (4.148) devine

$$\hbar\hat{V} = -\frac{1}{2}(\hat{p}^{+}E_{-} + \hat{p}^{-}E_{+}). \tag{7.3}$$

În evaluarea elementelor de matrice ale operatorilor $\hat{p}^{\pm}$ se ține seama de regulile de selecție $\Delta l = 1$, $\Delta m = \mp 1$, numerele cuantice ale stărilor $|a>$ și $|b>$ fiind $(l+1,\ m+1)$ respectiv $(l,\ m)$.

Corespunzător expresiei (1.166), pentru elementele de matrice ale perturbației se pot scrie relațiile

$$V_1 = -\varkappa E_x \text{ și } V_2 = -\varkappa E_y \tag{7.4}$$

unde $\varkappa = 2p/\hbar$, iar $p = |p_x| = |p_y|$.

Prin analogie cu vectorul pseudospin **r** definit de ecuațiile (1.162) — (1.164) se definește vectorul **R** prin relația

$$\langle \mathbf{R} \rangle = \frac{1}{2}\mathbf{r}. \tag{7.5}$$

În virtutea relației $\mathbf{r} = \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle$ rezultă $R_i = \frac{1}{2}\sigma_i$ încît componentele R_i satisfac relațiile de comutare ale momentului cinetic. Ca urmare vectorul **R** se poate numi *„pseudomoment cinetic"*. Definim în continuare vectorul *„pseudocîmp electric"*

$$\mathscr{E} = E_x\mathbf{i} + E_y\mathbf{j} - \frac{\omega_0}{\varkappa}\mathbf{k} \tag{7.6}$$

și vectorul *„pseudomoment de dipol electric"*

$$\mathscr{P} = 2p\mathbf{R}. \tag{7.7}$$

Hamiltonianul sistemului se scrie sub o formă compactă astfel:

$$\hat{H} = \hat{H}_A + \hbar\hat{V} = \hat{H}_A - \hat{p}E = -\hat{\mathscr{P}}\mathscr{E}. \tag{7.8}$$

Definițiile (7.6) și (7.7) evidențiază analogia dintre vectorii $\mathscr{E}$ și $\boldsymbol{\omega}$ respectiv $\mathscr{P}$ și **r** astfel încît ecuația de mișcare (1.172) se poate scrie sub forma

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\langle \mathscr{P} \rangle = \varkappa \langle \mathscr{P} \rangle \times \mathscr{E} \tag{7.9}$$

și evidențiază *precesia* vectorului $\mathscr{P}$ în jurul vectorului $\mathscr{E}$.

Generalizarea rezultatelor de mai sus pentru cazul unui sistem format din N atomi cu două nivele se poate obține direct dacă se fac ipotezele:

— atomii se consideră suficient de distanțați astfel încît funcțiile de undă nu se acoperă;

— atomii sînt situați într-o incintă de dimensiuni mult mai mici în raport cu lungimea de undă, astfel încît aceștia interacționează cu același cîmp;

— se neglijează mișcarea atomilor.

Rezultă pentru hamiltonianul sistemului expresia

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{W} = -\hat{\mathscr{P}}\mathscr{E} = \hbar\omega_0\hat{\mathscr{R}}_3 - 2p(E_x\hat{\mathscr{R}}_1 + E_y\hat{\mathscr{R}}_2) = -2p\hat{\mathscr{R}}\mathscr{E} \tag{7.10}$$

unde

$$\hat{\mathscr{R}}_i = \sum_{k=1}^{N} \hat{R}_i^k \; (i = 1, 2, 3) \tag{7.11}$$

sînt operatori *pseudomoment cinetic „colectiv"*, care satisfac relațiile de comutare ale momentului cinetic. Evident că se pot defini și operatorii de progresie și regresie

$$\hat{\mathscr{R}}_{\pm} = \hat{\mathscr{R}}_1 \pm i\hat{\mathscr{R}}_2. \tag{7.12}$$

În continuare, se evaluează rata emisiei spontane între stările $|\psi_i>$ și $|\psi_f>$, conform expresiei :

$$|\langle\psi_f|\hat{W}|\psi_i>|^2 = 4p^2|<\psi_f|(E_x\hat{\mathscr{R}}_1 + E_y\hat{\mathscr{R}}_2)|\psi_i>|^2 \tag{7.13}$$

și se analizează dependența acestei mărimi de modul în care este preparat sistemul.

Fie N_+ numărul de sisteme atomice în starea $|a>$ și N_- numărul de sisteme atomice în starea $|b>$. Ecuația cu funcții proprii și valori proprii a hamiltonianului are forma

$$\hat{H}_0|\psi> = \hbar\omega_0\hat{\mathscr{R}}_3|\psi> = m\hbar\omega_0|\psi> \tag{7.14}$$

unde

$$m = (N_+ - N_-)/2 \text{ și } N_+ + N_- = N \tag{7.15}$$

iar

$$|\psi> = \prod_{i=1}^{N}|\psi_i> = (+ + - - \ldots + -). \tag{7.16}$$

Valoarea proprie $m\hbar\omega_0$ a energiei neperturbate H_0 este degenerată de ordinul

$$g_m = \frac{N!}{(N_+)!(N_-)!} = \frac{N!}{(N/2+m)!(N/2-m)!} \tag{7.17}$$

corespunzător posibilităților de excitare a sistemului descris de $|\psi>$ (nu are importanță care dintre atomi sînt excitați), degenerescența fiind maximă pentru $m = 0$. Se observă că există un mare număr de stări finale, compatibile cu o stare inițială dată, conform relației (7.16), în concordanță cu regula de selecție $\Delta m = \pm 1$ a momentului cinetic, respectată de componentele $\hat{\mathscr{R}}_i$. Ulterior, Dicke a observat că degenerescența poate fi redusă prin alegerea unui set de stări staționare $|r, m>$ care să fie stări proprii simultane ale operatorilor comutativi $\hat{\mathscr{R}}^2$ și $\hat{H}_0$. Astfel de stări conectează o stare dată cu cel mult o stare de energie mai ridicată sau mai scăzută.

Stările $|r, m>$ determinate de ecuațiile cu funcții proprii și valori proprii următoare

$$\hat{\mathscr{R}}^2|r, m> = r(r+1)|r, m> \tag{7.18}$$

$$\hat{H}_0|r, m> = \hbar\omega_0\hat{\mathscr{R}}_3|r, m> = \hbar\omega_0 m|r, m> \tag{7.19}$$

sînt cunoscute sub numele de *stările Dicke atomice* și sînt analoge *stărilor Fock* pentru cîmp definite în anexa 2.

Numărul cuantic r, introdus prin analogie cu numărul cuantic intern al atomului j, poate lua valori întregi și semiîntregi și se numește *număr cuantic cooperativ*, deoarece după cum se va arăta el caracterizează coerența atomică.

Ca urmare a analogiei cu teoria momentului cinetic, valorile pe care le pot lua numerele cuantice m și r sînt limitate de inegalitățile

$$|m| \leqslant r \leqslant N/2. \tag{7.20}$$

Pentru construirea setului complet de stări Dicke $|r, m>$, utilizîndu-se metoda standard a momentului cinetic, se pornește de la starea $|r, m> = |N/2, N/2> = |(++\ldots+)> = \psi_{N/2, N/2}$ și se aplică operatorul de regresie $\hat{\mathcal{R}}_k^-$ acestei stări ($k = 1, 2, \ldots N$). Se obține starea proprie $|r, m> = |N/2, N/2-1>$ care este dată de o superpoziție simetrică de stări în care un singur atom este în starea inferioară $|b>$

$$\psi_{N/2, N/2-1} = |(-++++)> + |(+-+++)> + \ldots$$
$$\ldots + |(+++\ldots+-)>. \tag{7.21}$$

Întrucît există N funcții cu un singur atom în starea $|b>$, se mai pot construi $(N-1)$ combinații liniare ale acestor funcții, care sînt, de asemenea, funcții proprii ale lui $\hat{\mathcal{R}}^2$ și $\hat{\mathcal{R}}_3$ dar care trebuie să corespundă numerelor cuantice $r = \frac{N}{2} - 1$ și $m = \frac{N}{2} - 1$. Acest lucru rezultă din calculul degenerescenței $g_{N/2-1} = N$ conform formulei (7.17); una dintre aceste N stări fiind $\psi_{N/2, N/2-1}$ rezultă că celelalte trebuie să fie de tipul $\psi_{N/2-1, N/2-1}$. Pe de altă parte, prin aplicarea repetată a operatorului $\hat{\mathcal{R}}^-$ stărilor $|N/2, N/2>$ se generează șirul de stări:

$$\left|\frac{N}{2}, \frac{N}{2}\right>, \left|\frac{N}{2}, \frac{N}{2} - 1\right>, \left|\frac{N}{2}, \frac{N}{2} - 2\right>, \ldots$$
$$\left|\frac{N}{2}, 0\right>, \ldots \left|\frac{N}{2}, -\frac{N}{2} + 1\right>, \left|\frac{N}{2}, -\frac{N}{2}\right>. \tag{7.22}$$

Procedeul se aplică în continuare pentru generarea setului complet de stări Dicke.

Din calculul elementelor de matrice ale tranzițiilor de emisie spontană

$$|<r, m-1|\hat{\mathcal{R}}^-|r, m>|^2 = (r+m)(r-m+1), \tag{7.23}$$

rezultă și relația de recurență

$$\hat{\mathcal{R}}^{\pm}|\psi_{r,m}> = \sqrt{(r \mp m)(r \pm m + 1)}\,|\psi_{r,m\pm 1}>, \tag{7.24}$$

care implică regulile de selecție

$$\Delta r = 0, \qquad \Delta m = \pm 1. \tag{7.25}$$

Întrucît stările Dicke $|r, m>$ sînt după cum s-a arătat degenerate, pentru specificarea lor sînt necesare numere cuantice suplimentare, notate cu k, astfel încît au forma $|r, m, k>$. Rezultă că există operatori ai grupului permutărilor celor N particule care pot fi adăugați operatorilor $\hat{\mathcal{R}}^2$ și $\hat{\mathcal{R}}_3$ pentru a se obține setul complet de stări proprii.

În continuare vom specifica stările Dicke prin $|m>$. Se observă că aceste stări pot fi generate și prin aplicarea operatorului $\hat{\mathcal{R}}^+$ *stării funda-*

mentale Dicke $|-r>$ prin analogie cu generarea stărilor Fock ale cîmpului, conform relațiilor

$$\hat{\mathcal{R}}_-|-r>=0\,; \tag{7.26}$$

$$|m>=\sqrt{\frac{(r-m)!}{(2r)!(r+m)!}}\,\mathcal{R}_+^{r+m}|-r>. \tag{7.27}$$

7.2.2. Stările atomice coerente

Analogia dintre stările Dicke și stările Fock conduce la ideea stabilirii unei corespondențe între stările coerente ale cîmpului studiate în capitolul 2 și eventualele stări atomice coerente, dacă acsetea există. În continuare se admite existența stărilor atomice coerente avînd expresia generală

$$|\tau>=(1+|\tau|^2)^{-r}\exp(\tau\hat{\mathcal{R}}_+)|-r> \quad (<\tau|\tau>=1) \tag{7.28}$$

unde τ este un număr arbitrar complex.

Există posibilitatea unei reprezentări parametrice a stărilor coerente, cu ajutorul notației

$$\tau=\mathrm{tg}\left(\frac{\theta}{2}\right)e^{i\varphi} \tag{7.29}$$

unde θ și φ sînt cooronatele sferice unghiulare ($\theta=0$ corespunde sensului negativ al axesi z), sub forma

$$|\tau>=|\theta,\varphi>=\left(\cos\frac{\theta}{2}\right)^{2r}\exp\left[\mathrm{tg}\left(\frac{\theta}{2}\right)e^{-i\varphi}\hat{\mathcal{R}}_+\right]|-r>. \tag{7.30}$$

Întrucît

$$\langle\theta,\varphi|\hat{\mathcal{R}}_3|\theta,\varphi\rangle=-r\cos\theta \tag{7.31}$$

$$\langle\theta,\varphi|\hat{\mathcal{R}}_\pm|\theta,\varphi\rangle=r\sin\theta e^{\pm i\varphi} \tag{7.32}$$

$$\langle\theta,\varphi|\hat{\mathcal{R}}|\theta,\varphi\rangle=\mathbf{r}=(r,\theta,\varphi) \tag{7.32}$$

rezultă că $\mathbf{r}$ poate fi considerat vectorul de poziție în direcția (θ,φ) al punctelor unei sfere, numită *sferă Bloch*, care permite o interpretare intuitivă a stărilor coerente: stările atomice coerente se obțin din starea fundamentală $|-r>=|\theta=0>$ printr-o rotație

$$|\theta,\varphi>=R_{\theta,\varphi}|-r> \tag{7.34}$$

$R_{\varphi,\theta}$ fiind operatorul de rotație $|-r>\to|\theta,\varphi>$, adică din direcția polului sud al sferei în direcția (θ,φ).

Principalele proprietăți ale stărilor atomice coerente, care-și au corespondent în cazul stărilor coerente ale cîmpului de radiație, sînt următoarele:

— neortogonalitatea a două stări coerente diferite, exprimată de relația

$$\langle\tau'|\tau\rangle\neq 0 \qquad |\tau'>\neq|\tau> \tag{7.35}$$

analogă cu (2.116);

— stările atomice coerente corespund stărilor fundamentale ale operatorului pseudomoment cinetic rotite pe sfera Bloch, după cum stările coerente ale cîmpului corespund deplasării stărilor fundamentale ale oscilatorului armonic;

— stările atomice coerente satisfac relațiile de incertitudine la limită (sînt stări cu incertitudine minimă) conform relațiilor

$$\langle(\Delta\hat{\mathscr{R}}_1')^2\rangle \langle(\Delta\hat{\mathscr{R}}_2')^2\rangle \geqslant \frac{1}{4} \langle(\hat{\mathscr{R}}_3')^2\rangle \tag{7.36}$$

unde

$$\hat{\mathscr{R}}_i' = R_{\theta,\varphi}\hat{\mathscr{R}}_i R_{\theta,\varphi}^{-1} \tag{7.37}$$

proprietate care caracterizează și stările coerente ale cîmpului (relația (2.120);

— stările atomice coerente formează un sistem supracomplet de stări proprii, într-un subspațiu Hilbert finit—dimensional, cu un număr cooperativ r fixat, ca și stările coerente ale cîmpului de radiație.

(Expresia (2.117) privind rezoluția unitară a setului supracomplet de stări coerente ale cîmpului de radiație este înlocuită în cazul stărilor atomice coerente prin egalitatea

$$(2r+1)\int |\mathbf{r}\rangle\langle\mathbf{r}| \frac{d\Omega}{4\pi} = 1 \tag{7.38}$$

unde $|\mathbf{r}\rangle = |\theta, \varphi\rangle$ specifică stările atomice coerente ale pseudomomentului cinetic în direcția (θ, φ), desemnînd un vector unitar în această direcție);

— orice vector de stare $|u\rangle$, în subspațiul Hilbert pe care este satisfăcută condiția (7.38) admite o dezvoltare funcție de stările coerente atomice.

De asemenea, pentru orice operator acționînd în subspațiul Hilbert considerat există o reprezentare diagonală în raport cu stările coerente.

Pentru operatorul densitate, coeficienții dezvoltării definesc o distribuție de cvasiprobabilitate pe sfera Bloch. Aceste proprietăți au fost discutate și pentru stările coerente ale cîmpului [rel. (2.128), (2.129), (2.131)].

Fundamentarea matematică a analogiilor dintre proprietățile de coerență ale atomilor și cîmpurilor. Se consideră planul tangent la sfera Bloch în punctul care se identifică cu polul sud al acesteia. Fiecărei stări coerente asociată unui punct P de pe sferă îi corespunde un punct P' în planul tangent, ca urmare a proiecției punctului P, în raport cu polul nord al sferei considerat centru de proiecție.

Folosindu-se o astfel de proiecție stereografică și făcîndu-se raza r a sferei Bloch să tindă către infinit rezultă că oricărei rotații pe sferă îi corespunde o translație în planul tangent.

Întrucît planul tangent corespunde planului fazelor pentru un oscilator armonic, se poate stabili pe această bază o corelație între *algebra momentului cinetic* și *algebra oscilatorului armonic*. Printr-un astfel de pro-

ces de „*contracție*" *a grupurilor* utilizîndu-se un procedeu de trecere la limită, se evidențiază corespondențele :

a) *pentru operatori*

$$\varepsilon\hat{\mathscr{R}}_{+},\ \varepsilon\hat{\mathscr{R}}_{-},\ \hat{\mathscr{R}}_{3}+\frac{1}{2}\varepsilon^{-2}\rightarrow\hat{a}^{+},\hat{a},\ \hat{a}^{+}\hat{a}$$

unde $\varepsilon \rightarrow 0$ $(r = \frac{1}{2}\varepsilon^{-2})$;

b) *pentru vectorii de stare*

— vectorii de stare Dicke $|m>$ → vectorii de stare Fock $|n>$;

— stările atomice coerente $|\theta, \varphi>$ → stările coerente ale cîmpului $|\alpha>$.

Interacția stărilor atomice coerente cu cîmpul de radiație. Întrucît rata emisiei spontane a sistemului aflat în starea $|r, m>$ este proporționată cu pătratul elementului de matrice $\langle r, m-1\,|\hat{\mathscr{R}}^{-}|\,r, m\rangle$, determinat de expresia (7.23), se poate scrie

$$I(r, m) = (r + m)\,(r - m + 1)I_0 \tag{7.39}$$

unde I_0 este rata emisiei spontane pentru un singur atom excitat ($r = m = 1/2$).

Pentru o superpoziție de stări $|r, m>$, rata radiației emise are expresia

$$I = \sum_{r,m} P_{r,m} I(r, m), \tag{7.40}$$

unde $P_{r,m}$ este probabilitatea ca sistemul să fie în starea $|r, m>$. Rezultă pentru sistemul aflat în starea inițială $|\tau>$ expresia

$$I = I_0 \sum_{m=-r}^{r} (r + m)(r - m + 1)|<m|\tau>|^2 \tag{7.41}$$

sau echivalent

$$I(\theta, \varphi) = I_0\left(r^2 \sin^2\theta + 2r\sin^4\frac{\theta}{2}\right), \tag{7.42}$$

în concordanță cu relațiile (7.31) — (7.33).

Comparînd această expresie cu cea a ratei de radiație pentru un sistem aflat în starea Dicke, avînd aceeași valoare medie a energiei

$$I(r, m = -r\cos\theta) = I_0\left(r^2\sin^2\theta + 2r\sin^2\frac{\theta}{2}\right), \tag{7.43}$$

rezultă că pentru $r \gg 1$, cele două rate de radiație coincid.

Se poate arăta că deși ratele de radiație coincid, între cele două categorii de stări sînt diferențe esențiale. Astfel, valoarea medie a momentului de dipol este nulă pentru stările Dicke și diferite de zero pentru stările atomice coerente. Întrucît rata de radiație clasică are expresia

$$I_{cl} = I_0 r^2 \sin^2\theta \tag{7.44}$$

rezultă, ţinîndu-se seama de (7.43), că stările Dicke ca şi stările Fock nu au analog clasic pe cînd stările coerente sînt stări cuantice care se apropie cel mai mult de situaţiile clasice (ca şi stările coerente ale cîmpului).

7.3. Fluorescenţa de rezonanţă a atomilor în cîmpuri puternice coerente

Apare la interacţia rezonantă sau cvasirezonanţă a cîmpului electromagnetic coerent cu un singur atom, astfel că nu reprezintă un fenomen cooperativ, dar caracterizează proprietăţile celui mai simplu sistem deschis al mecanicii cuantice în interacţie cu cîmpul. Pentru intensităţi suficient de scăzute ale cîmpului, împrăştierea fotonilor pe atomi este perfect elastică.

Prin creşterea intensităţii cîmpului de radiaţie apare o componentă inelastică lorentziană, avînd lărgimea liniei naturale γ şi frecvenţa centrală egală cu cea a cîmpului.

La intensităţi şi mai mari ale cîmpului, *frecvenţa Rabi* a cîmpului incident, definită prin relaţia

$$\Omega^R = \frac{dE}{\hbar} \text{(se mai notează } \gamma^R \text{ sau } \gamma_R) \qquad (7.45)$$

depăşeşte lărgimea liniei naturale (d este modulul momentului electric de dipol), astfel încît pentru $\Omega^R \gg \gamma$ spectrul radiaţiei se modifică esenţial fiind format din trei componente : o componentă centrală şi două laterale, simetrice, lorentziene, de lărgime $(3/2)\gamma$, deplasate faţă de frecvenţa centrală cu frecvenţa Rabi. Efectul corespunzător, cunoscut şi sub numele de *efect Stark dinamic*, are loc cu reducerea puternică a componentei elastice difuzate care devine neglijabilă.

Intensităţile cîmpului ating valori ridicate care saturează tranziţia dar se menţin totuşi sub limita celor care determină armonici optice în spectrul de emisiei ($\Omega^R \ll \omega$).

Investigarea fluorescenţei atomice de rezonanţă reprezintă o metodă importantă pentru determinarea parametrilor atomici şi pentru studiul mecanismului de interacţie cîmp — atomi.

Dacă în cazul experimentelor de fluorescenţă cu surse standard, distribuţia în frecvenţă a atomilor incidenţi este mai largă decît lărgimea naturală a tranziţiei, în cazul utilizării laserilor, radiaţia incidentă are o distribuţie spectrală mai îngustă în raport cu lărgimea naturală.

În consecinţă, timpul de corelaţie în interacţia foton-atom, determinat de timpul de viaţă al atomilor în stare excitată, pentru sursele standard, este mult mai mare în cazul laserilor.

Pentru un cîmp cu o coerenţă ridicată cum este radiaţia laser, nu se mai pot considera independente procesele succesive de absorbţie — emisie a fotonilor, întrucît în timpul mult mai lung de coerenţă pot avea loc multe procese de acest tip, efectele de „memorie de fază'' fiind importante.

Efectul Stark dinamic este o consecinţă a acestei comportări.

În cazul general, trebuie să se ţină seama, în studiul interacţiei, de lărgimea finită a liniei laser, de faptul că atomii reprezintă sisteme multi-

nivel, și în mod special de faptul că la interacție participă mai mulți atomi. Ca urmare, devin esențiale fenomenele cooperative, de tip bistabilitate optică, de exemplu, care modifică spectrul radiației de fluorescență. (Pe lîngă proprietățile spectrale, în studiu trebuie considerate și efectele de corelație pentru intensitățile difuzate ale radiației, precum și cele datorită intersecțiilor de nivele, efect Hanle etc.).

Rezultatele teoretice cele mai importante privind tratarea interacției atomilor cu cîmpurile intense monocromatice sînt prezentate în lucrările [379–381]. În alte lucrări [382–385] se discută pe larg principalele tipuri de experimente și rezultatele corespunzătoare privind acest domeniu.

7.4. Superradianța

7.4.1. Coerența atomică și stările superradiante

Expresiile (7.39) și (7.40) ale ratei de emisie spontană pentru un sistem atomic aflat în starea $|r, m>$ pot fi utilizate pentru definirea stărilor superradiante ale sistemului.

Astfel, dacă toți atomii sînt inițial excitați, adică $r = m = N/2$ ($N^+ = N/2 + m = N$, $N^- = N/2 - m = 0$), se obține

$$I(N/2, \ N/2) = NI_0 \tag{7.46}$$

deci toți atomii radiază independent, fără a apare efecte de interferență. Pentru a determina condițiile în care rata de emisie este maximă se anulează derivata expresiei (7.39) în raport cu m. Se obține $m = 1/2$ astfel încît, rezultă valoarea maximă a lui $I(r, m)$ pentru $m = 0$ sau $m = 1$ și r cît mai mare. Maximul absolut va fi astfel determinat de $r = N/2$ și întrucît $I(r, \ 0) = I(r, 1)$ se obține

$$I(N/2, 0) = \frac{N}{2}\left(\frac{N}{2} + 1\right) I_0 \simeq \frac{N^2}{4} I_0. \tag{7.47}$$

Astfel de stări ale sistemului atomic pentru care rata de radiație este proporțională cu N^2 se numesc *stări superradiante* și corespund oscilației *în fază* a tuturor atomilor excitați, rezultînd un moment electric de dipol gigant,

$$\mathbf{P} = N\mathbf{d} \tag{7.48}$$

unde **d** este momentul de dipol al atomilor individuali.

Spre deosebire de cazul în care atomii oscilează în fază (puterea radiată este proporțională cu N), în cazul stărilor superradiante puterea radiată este proporțională cu N^2, ca urmare a comportării cooperative a sistemului atomic.

Atomii care emit cooperativ „comunică'' între ei mai repede decît radiază.

Pentru o ilustrare mai sugestivă a comportării cooperative a sistemului atomic ne vom referi la un sistem cu doi atomi ale cărui stări sînt prezentate în fig. 7.2.

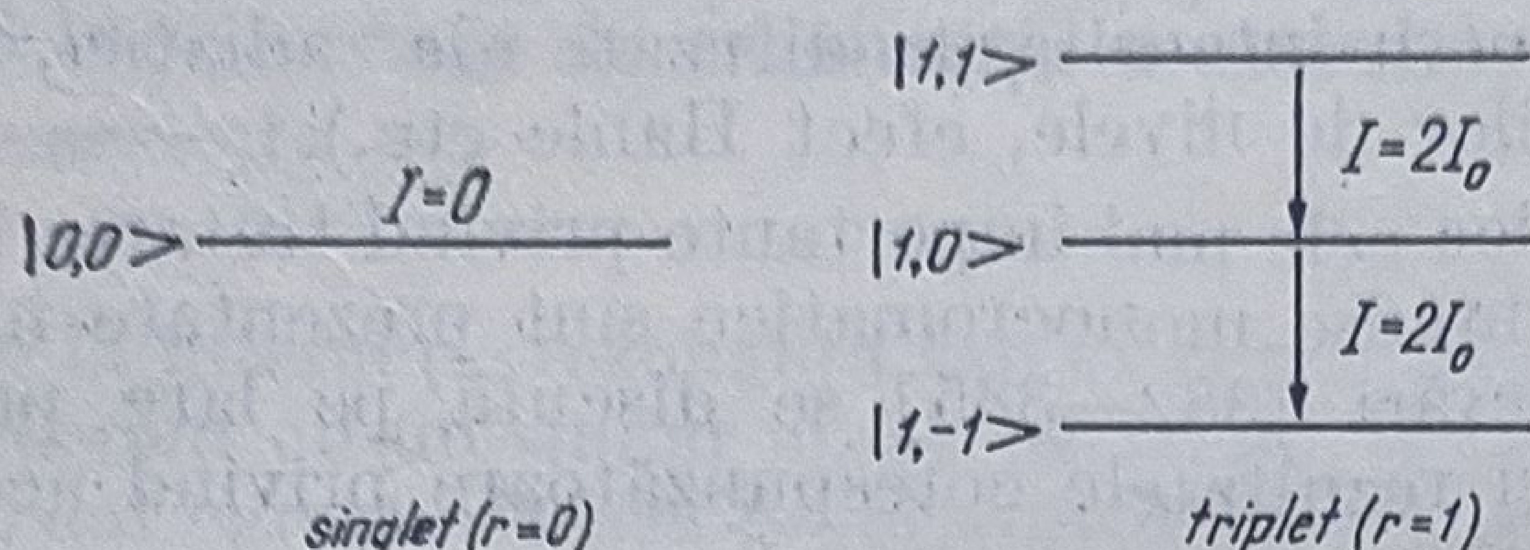


Fig. 7.2

Starea de singlet este $|0, 0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}[(+\,-) - (-\,+)]$ iar stările de triplet au forma: $|1, 1\rangle = (+\,+)$, $|1, 0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}[(+\,-) + (-\,+)]$ respectiv $|1, -1\rangle = (-\,-)$.

Considerăm sistemul inițial în starea $(+\,-)$ adică cu un singur atom excitat, probabilitățile ca sistemul să fie în starea de singlet sau triplet find egale. Starea de singlet este neradiativă, tranzițiile singlet-triplet fiind, interzise. Deși rata de radiație pentru starea de triplet $I = \frac{1}{2}(2I_0) = I_0$ este aceeași ca și pentru atomul izolat, pentru un interval de timp suficient de lung, probabilitatea ca fotonul să nu fie emis tinde nu către zero ci către 1/2 datorită energiei „blocate'' în starea de singlet neradiativă.

Acest rezultat ilustrează faptul că prezența celui de al doilea atom în starea fundamentală influențează esențial rata de emisie a atomului excitat, deși aceștia nu interacționează direct ci prin intermediul cîmpului de radiație.

În general, se poate constata că hamiltonianul sistemului implică toți atomii într-un mod simetric, în raport cu permutările acestora.

Prin emisia unei singure cuante se ajunge într-o stare care nu diferă ca structră mult de starea inițială, astfel încît emisia se produce în continuare în avalanșă. De observat că fenomenul de emisie superradiantă nu este corelat în nici un fel cu emisia stimulată, unde rata netă de emisie este roporțională cu diferența dintre ratele de emisie și absorbție și cu număul de fotoni pe mod

$$(r + m)(r - m + 1) - (r + m + 1)(r - m) = 2m. \qquad (7.49)$$

Pentru $m < 0$ relația (7.49) descrie rata de absorbție incoerentă iar pentru $m > 0$ se obține rata de emisie stimulată. Prin urmare, deși emisia superradiantă este anormal de puternică, rata emisiei stimulate rămîne normală.

Tot o comportare cooperativă o manifestă sistemul aflat în starea cu $r = N/2$ și $m = -(N/2) + 1$, care are un singur atom excitat. Rata de radiație

$$I(N/2, -(N/2) + 1) = NI_0 \qquad (7.50)$$

este de N ori rata de radiație a unui singur atom, ca urmare a coerenței printre atomi (nu știm însă care atom este excitat, excitația fiind distribuită simetric între atomi).

Deși comportarea este cooperativă, starea nu este superradiantă. În sfîrșit, starea cu $r = m = 0$, nu radiază ($I = 0$), fiind echivalentă stării clasice cu perechi de dipoli oscilînd în opoziție de fază. Deci stările cu numere cooperative r mici sînt, de asemenea, corelate dar într-un mod în care au rata de radiație extrem de scăzută.

7.4.2. Excitarea stărilor superradiante

O posibilitate de a se obține un sistem (avînd dimensiunile mult mai mici decît lungimea de undă) într-o stare superradiantă constă în trecerea mai întîi a acestuia cu toști atomii în stare excitată ($r = m = N/2$) prin pompaj (inversie de populație completă).

Prin radiație pot avea loc tranziții succesive fără schimbarea lui r, într-o stare cu m apropiat de zero, care este astfel o stare superradiantă.

O altă metodă constă în excitarea sistemului aflat inițial în starea fundamentală ($m = -N/2 = -r$), printr-un impuls de radiație de durată mică, suficient de intens, în starea cu $m = 0$, fără modificarea lui r.

Această metodă se utilizează în practică pentru obținerea și evidențierea stărilor superradiante, cu ajutorul *ecoului fotonic*.

7.4.3. Modelul semicuantic și clasic al superradianței

În teoria semicuantică analiza superradianței se face tratînd sistemul atomic cuantic iar cîmpul de radiație clasic. Să presupunem că sistemul atomic aflat în echilibru termic a fost excitat în stare superradiantă, printr-un impuls de radiație. Fie N_- numărul de molecule (atomi) în stare fundamentală la echilibru termic și N_+ numărul de molecule în stare excitată astfel încît

$$N_+/N_- = \exp[-E/kT] \tag{7.51}$$

$$N_{(+)} - N_{(-)} = N \operatorname{tgh}(E/2kT). \tag{7.52}$$

Prin aplicarea impulsului de radiație, atomii trec în superpoziții de stări de forma

$$\psi_+ = \frac{1}{\sqrt{2}}\left\{[+]\exp\left(-\frac{i\omega t}{2}\right) + [-]\exp\left(\frac{i\omega t}{2} + i\delta\right)\right\} \tag{7.53}$$

sau

$$\psi_- = \frac{1}{\sqrt{2}}\left\{[-]\exp\left(-\frac{i\omega t}{2}\right) - [+]\left(-\frac{i\omega t}{2} - i\delta\right)\right\} \tag{7.54}$$

după cum starea inițială este starea fundamentală sau cea excitată.

Din calculul valorii medii a momentului de dipol electric rezultă pentru rata de radiație calculată clasic, $I \sim N^2$, ca și în cazul teoriei cuantice.

În cazul în care sistemul atomic este caracterizat de valori mari ale numărului cuantic cooperativ r, interacția sa cu cîmpul de radiație poate fi descrisă și clasic, pe baza analogiei dintre pseudomomentul cinetic $\mathcal{R}$

şi momentul cinetic, întrucît conform relaţiilor (7.7) şi (7.18) se poate scrie

$$\langle \mathscr{P}^2 \rangle = 4p^2 \langle \mathscr{R}^2 \rangle = 4p^2\, r(r+1). \tag{7.55}$$

Ţinînd seama de ecuaţia (7.55) se poate considera că ecuaţia (7.9) descrie o mişcare de precesie, definită de numărul cuantic $m = r\cos\theta$ unde θ este unghiul dintre vectorul $\langle \mathscr{P} \rangle$ şi axa z (fig. 7.3). Întrucît din relaţia (7.19) rezultă

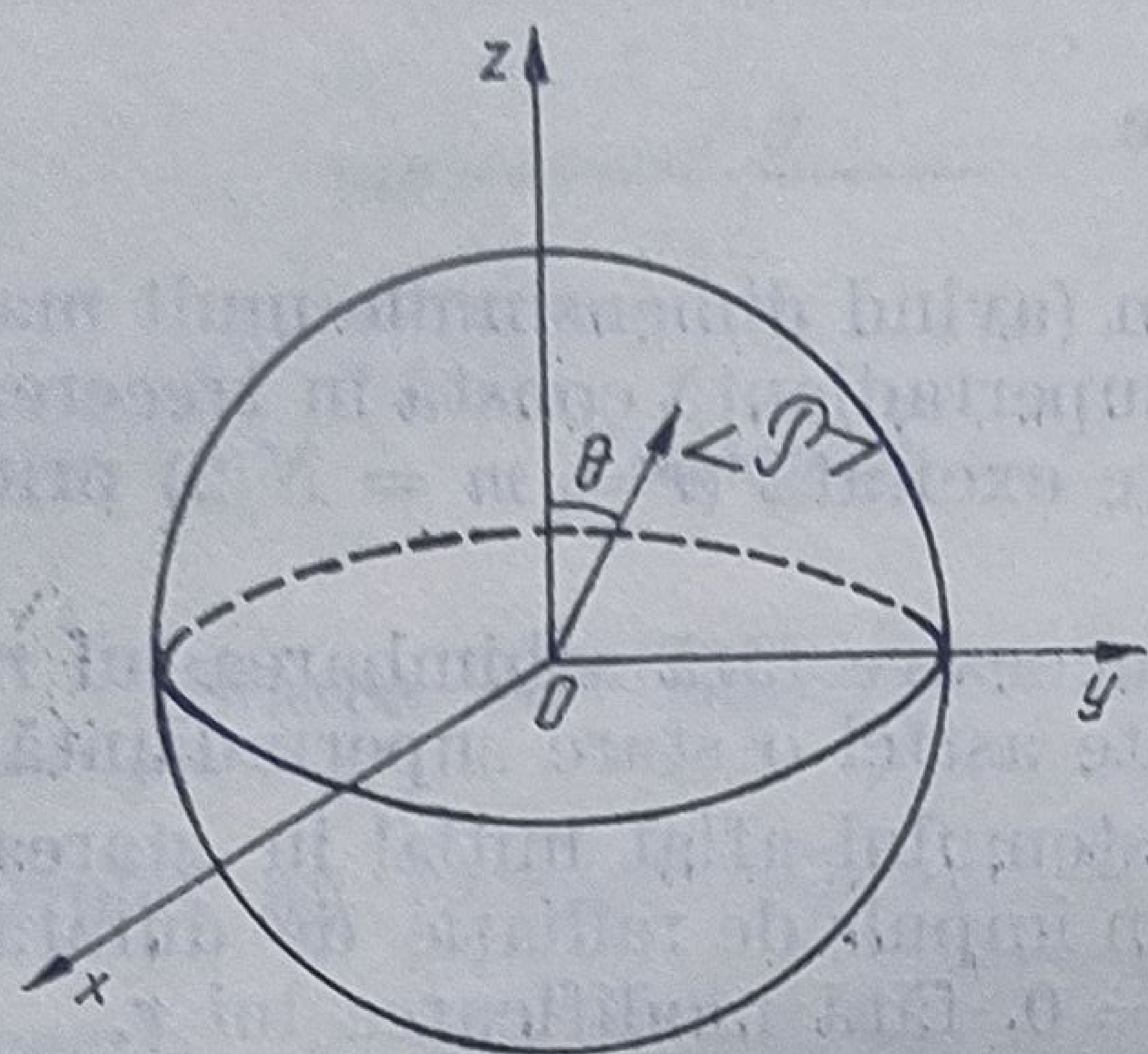


Fig. 7.3

$$\langle H_0 \rangle = m\hbar\omega_0 \tag{7.56}$$

se obţine pentru rata emisiei spontane expresia

$$I \sim I_0(r^2 - m^2) = I_0 r^2 \sin^2\theta. \tag{7.57}$$

Se observă că starea superradiantă corespunde lui $\theta = \pi/2$. Întrucît $I = -\frac{d}{dt}\langle H \rangle_0$ ca urmare a conservării energiei, din (7.56) şi (7.57) se obţine ecuaţia diferenţială

$$\dot\theta = \frac{I_0 r}{\hbar\omega_0}\sin\theta = \alpha\sin\theta \tag{7.58}$$

sau pentru $\varphi = 2\theta$

$$\ddot\varphi = \alpha^2 \sin\varphi. \tag{7.59}$$

Ecuaţia (7.58) se identifică cu ecuaţia pendulului simplu de lungime l pentru $\alpha^2 = g/l$, deci va descrie mişcarea pendulului de energie $E = mgl$, aflat în echilibru instabil în punctul $\varphi = 0$. Prin integrarea ecuaţiei (7.58) cu condiţia iniţială $\theta = \pi/2$ la $t = 0$, se obţine soluţia

$$\sin\theta = \operatorname{sech}(\alpha t), \quad \operatorname{tg}(\theta/2) = e^{\alpha t} \tag{7.60}$$

care corespunde mişcării unui pendul circular aperiodic, a cărui mişcare este iniţiată la $t = -\infty$ din punctul de echilibru instabil $\varphi = 0$ şi ajunge la echilibru după o rotaţie completă ($\varphi = 2\pi$, $\theta = \pi$) cînd $t \to \infty$. Starea superradiantă corespunde momentului $t = 0$ cînd $\varphi = \pi$ şi $\theta = \pi/2$.

Se poate arăta că dependenţa de timp a cîmpului radiat are forma

$$A(t) = e^{i\omega_0 t}\sin\theta, \quad t > 0 \tag{7.61}$$

unde $\sin\theta$ are expresia (7.60).

Pentru $t \gg \alpha^{-1}$ se obţine

$$A(t) \simeq 2\exp(-i\omega_0 t - \alpha t). \tag{7.62}$$

Legea de scădere a amplitudinii nefiind exponenţială, rezultă pentru lărgimea liniei (nelorentziană)

$$\Delta\omega \sim \alpha = r\gamma \tag{7.63}$$

deci emisia superradiantă constă dintr-un singur impuls de intensitate foarte ridicată $I \sim r^2 I_0$, dar de durată foarte scurtă $\tau' = \frac{\tau}{r} \sim N^{-1}$, avînd lărgimea spectrală foarte mare $\Delta\omega \sim \gamma r (r \leqslant N/2)$.

Observații.

— Dacă se înlătură restricția $V \ll \lambda^3$ unde V este volumul sistemului iar λ lungimea de undă a radiației, diferiți atomi interacționează cu cîmpuri diferite, expresia (7.10) fiind mai complicată. Din studiu rezultă că emisia superradiantă are loc în acest caz într-o direcție preferențială **k**. (Emisia în alte direcții, determină tranziții în stări cu numere cooperative mai scăzute, distrugînd coerența ridicată a atomilor în starea superradiantă).

Se constată un efect de „grupare" a fotonilor în direcția **k**, ca urmare a unor corelații unghiulare ale fotonilor emiși succesiv. Tot în acest caz trebuie luată în considerare și forma geometrică a sistemului printr-un factor de directivitate a emisiei.

— Procesul de emisie spontană din stara superradiantă este analog, într-un anumit sens cu emisia stimulată a unui sistem excitat complet, în starea inițială, în prezența unui număr de fotoni egal cu populația nivelului excitat.

Întrucît pentru emisia superradiantă nu sînt necesari fotoni, superradianța poate fi considerată ca o emisie autostimulată.

— În cazul aplicării unui impuls convenabil unui sistem atomic cu două nivele degenerate, apare posibilitatea producerii superradianței bifotonice ca urmare a corelării nivelelor despicate în cîmp prin procese cu doi fotoni.

7.4.4. Evidențierea experimentală a superradianței Ecoul fotonic

Excitarea stărilor superradiante prin iradierea unei probe cu ajutorul unui impuls optic coerent, cu durata și intensitatea convenabil alese poate fi evidențiată cu ajutorul ecoului fotonic. În principiu, se consideră excitarea unui cristal subțire de rubin, de exemplu, cu două impulsuri optice coerente A și B, identice (emise de un laser cu rubin), de durată Δt(ns), întîrzierea impulsului B la trecerea prin probă, în raport cu A fiind $\Delta T \gg \Delta t$ (fig. 7.4).

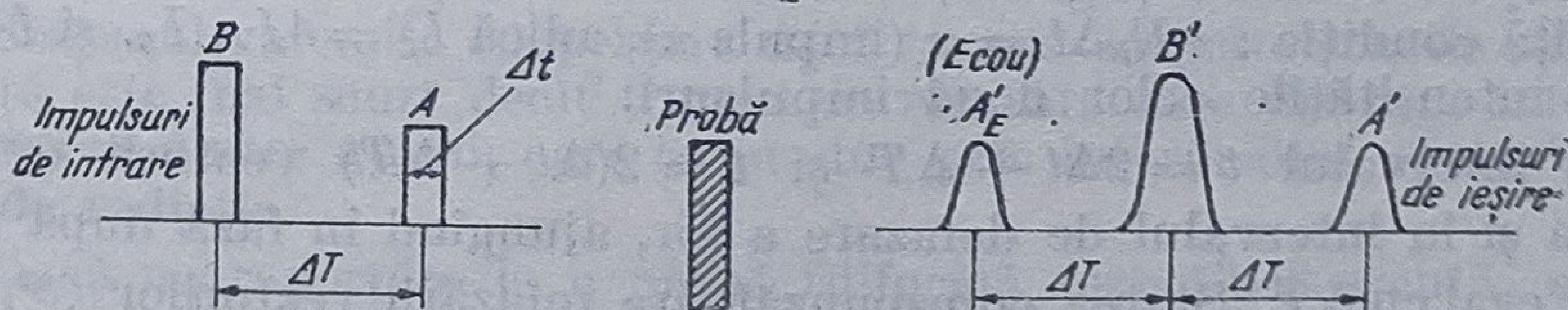


Fig. 7.4

Se constată că la ieșire, pe lîngă impulsurile A' și B' care corespund impulsurilor emise A și B, mai apare un al treilea impuls A'_E, situat simetric față de A' în raport cu B', numit *ecou fotonic*.

Pentru explicarea ecoului fotonic se utilizează ecuația de precesie (7.9), care, pentru un cîmp de radiație circular polarizat, și într-un sistem de referință care se rotește în jurul axei z cu frecvența ω, devine

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\langle \mathscr{P} \rangle = \varkappa \langle \mathscr{P} \rangle \times \left(E\mathbf{i} + \frac{\omega - \omega_0}{\varkappa} \mathbf{k} \right). \qquad (7.64)$$

Ținînd seama de lărgirea neomogenă a frecvenței de tranziție pentru atomii de rubin, datorită variațiilor cîmpului local, în ecuația (7.64) mărimile $\mathscr{P}$ și ω_0 vor fi afectate de indicele k care desemnează atomul k.

Dacă înainte de aplicarea impulsului A, atomii sînt toți în starea fundamentală, vectorul

$$\langle \mathscr{P} \rangle = \sum_{k=1}^{N} \langle \mathscr{P}_k \rangle \tag{7.65}$$

este orientat în sensul negativ al axei z.

Prin aplicarea impulsului A, de amplitudine E_A, între $t = 0$ și $t = \Delta t$, apare o mișcare de precesie a lui $\mathscr{P}$ în jurul pseudocîmpului dată de ecuația (7.64).

Dacă $E_A \gg |\omega - \omega_0|/\varkappa$, precesia se face în jurul axei x cu un unghi $\varkappa E_A \Delta t$ astfel că pentru o intensitate a impulsului care satisface condiția $\varkappa E_A \Delta t = \pi/2$ (impuls $\pi/2$), $\langle \mathscr{P} \rangle$ va fi orientat la momentul $t = \Delta t$ după axa y, sistemul aflîndu-se într-o stare superradiantă (fig. 7.5, a)

a)

(Planul x-y)

b)

c)

Fig. 7.5

La încetarea acțiunii cîmpului E_A, atomii vor executa mișcări de precesie cu viteze diferite în jurul pseudocîmpului $\frac{\Delta\omega_k}{\varkappa}\mathbf{k}$ unde $\Delta\omega_k = \omega - \omega_{0k}$.

În timpul acestor mișcări, în intervalul $t = \Delta t$ și $t = \Delta t + \Delta T$, componentele $\langle \mathscr{P}_k \rangle$ se defazează astfel încît $|\langle \mathscr{P} \rangle|$ scade (fig. 7.5, b).

Impulsul B care se aplică la momentul $t = \Delta t + \Delta T$ trebuie să reflecte vectorii $\langle \mathscr{P}_k \rangle$ în planul $x-y$ în raport cu axa x (fig. 7.5, c). Pentru a se obține acest efect trebuie îndeplinită condiția : $\eta E_B \Delta t = \pi$ (impuls π), adică $I_B = 4I_A$, I_B, și I_A specificînd intensitățile celor două impulsuri.

În intervalul $t = 2\Delta t + \Delta T$ și $t = 2(\Delta t + \Delta T)$ vectorii $\langle \mathscr{P}_k \rangle$ se mișcă ca și în intervalul de defazare a lor, ajungînd în fază după un alt interval egal cu ΔT. Starea corespunzătoare refazării vectorilor $\langle \mathscr{P}_k \rangle$ este o stare superradiantă evidențiată de emisia impulsului ecou A'_B.

Observație. Pe baza analogici dintre un sistem cu două nivele atomice și un sistem cu spini, tratată în paragraful 1.9, se poate extinde teoria superradianței și a ecoului fotonic și pentru sistemele cu spini. Astfel, atunci cînd trec din starea energetică superioară(↑) în starea energetică inferioară (↓) spinii au o mișcare giratorie (fig. 7.6), radiația datorîndu-se momentului magnetic de dipol oscilant al acestora. Starea superradiantă corespunde rotirii în fază a tuturor spinilor, astfel că apare un moment de dipol uriaș al acestora, proporțional cu numărul de spini N. Ecoul de spin este corelat cu oscilațiile pe frecvențe diferite ale spinilor în cîmpul magnetic local, care determină defazarea acestora ca și în cazul ecoului fotonic. Impulsul ecou se emite cînd spinii se refazează, în urma aplicării unui impuls π care inversează spinii. Un studiu complet al stărilor de spin superradiante și al ecoului de spin este prezentat în lucrarea [81].

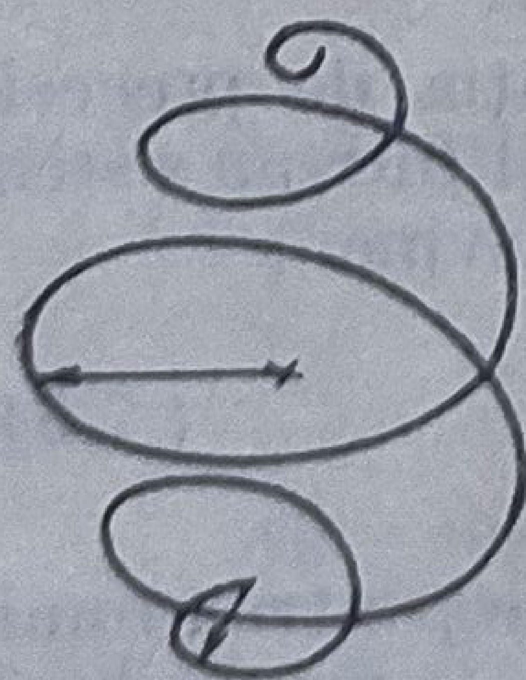


Fig. 7.6

7.5. Superfluorescența

Prin superfluorescență se înțelege emisia cooperativă de radiație a unui sistem atomic cu două nivele, toți atomii fiind inițial în starea superioară.

Ca și în cazul superradianței, intensitatea radiată este proporțională cu N^2 însă spre deosebire de superradiantă unde sistemul este preparat inițial (excitare coerentă), în cazul superfluorescenței sistemul alcătuit din dipoli atomici aleatori începe să radieze prin fluorescență normală (proporțional cu N), radiația de fluorescență normală creînd corelații atom—atom care induc emisia cooperativă de același tip cu superradianța. Se produce un proces în avalanșă, radiație-polarizare, inițiat de emisia spontană incoerentă care determină în final o polarizare macroscopică prin autoorganizarea sistemului.

Fenomenul de autoorganizare a sistemului macroscopic caracteristic superfluorescenței este unic pentru interacția cîmp — substanță.

Deși teoriile asupra superflorescenței se referă la probe punctuale ($L \ll \lambda$), experimentele de superfluorecență au fost efectuate cu probe extinse, de obicei filiforme.

Se apreciază că superfluorescența nu poate fi tratată satisfăcător decît cuantic, prin luarea în considerare a trecerii din starea de superfluorensența normală în starea de fluorescență cooperativă, într-o descriere tridimensională.

Prima observare experimentală a superfluorescenței pure (emisia unui singur impuls) se datorește lui Vrehen și Gibbs, în 1976—1977.

O primă condiție de producere a superfluorescenței o reprezintă inversia completă a sistemului atomic. Inversia este suficient de completă dacă inițial emisia spontană domină emisia cooperativă. În acest caz sistemul este superfluorescent (emisia se inițiază din zgomot) și nu superradiant.

Sistemul va emite cooperativ dacă timpul caracteristic de superfluorescență este mai scurt decît timpul de relaxare care distruge interacțiile cooperative dintre atomi, care se produc prin intermediul modurilor cîmpului de radiație.

Dacă ne raportăm la o probă filiformă superfluorescentă, se poate defini rata de emisie cooperativă γ_R prin relația

$$\gamma_R = \frac{3}{2} N\gamma(\lambda_0^2/4\pi S) = \frac{3}{8}\gamma\rho L\lambda_0^2 \tag{7.66}$$

unde γ este rata de emisie spontană, N numărul de atomi, λ_0^2/S unghiul solid de difracție, λ_0 lugimea de undă a radiației, L și S lungimea respectiv suprafața în secțiune transversală a probei iar ρ densitatea atomică.

De asemenea, se pot defini *timpul de viață radiativ* $\tau_R = \frac{1}{\gamma_R}$ și *timpul de întîrziere* τ_D între momentul creării inversiei de populație și cel al emisiei maxime (superfluorescenței), care caracterizează durata procesului de fluorescență. Dacă fotonii emiși parcurg proba în timpul τ_E, se poate defini *timpul de cooperare*

$$\tau_C = \sqrt{\tau_R \tau_E}\ (\tau_C \simeq \tau_R). \tag{7.67}$$

Se arată că în cazul superfluorescenței, între timpii de viață caracteristici definiți mai sus există inegalitățile

$$\tau_E < \tau_C < \tau_R < \tau_D. \tag{7.68}$$

În toate fenomenele atomice cooperative, se definește *parametrul cooperativ* C prin raportul

$$C = \gamma_R/2\gamma_\perp \tag{7.69}$$

unde $\gamma_\perp$ este rata de emisie spontană pentru un singur atom. Pentru parametrul C, care descrie de fapt competiția dintre comportarea cooperativă și comportarea „cu un atom'', s-a stabilit și următoarea expresie

$$C = \alpha L/2T \tag{7.70}$$

valabilă pentru mediul atomic din cavitățile Fabry-Perot, α fiind coeficientul de absorbție liniar, L lungimea probei iar T transmisivitatea oglinzilor. Pentru $C \ll 1$, atomii evoluează independent între ei, iar pentru $C \gg 1$ predomină comportarea cooperativă. În cazul $C < 1$, legea de emisie este exponențială, radiația emisă avînd spectrul radiației termice. Se poate considera ca $C = 1$ reprezintă un prag peste care caracteristicile de emisie ale sistemului se schimbă (se emite un impuls sau o succecsiune de impulsuri).

Dacă se definește și lungimea de cooperare

$$L_c = \frac{8}{3}\,\frac{c}{\rho\gamma\lambda_0^2 L} \tag{7.71}$$

se arată că superfluorescența se produce dacă

$$L \lesssim L_c \left(\gamma_R \lesssim \frac{c}{L}\right) \tag{7.72}$$

adică lungimea probei trebuie să fie mai mică decît L_c. Expresia (7.70) combinată cu condiția $C \gg 1$ conduce la condiția necesară

$$\alpha L_c \gg 1 \tag{7.73}$$

ceea ce presupune un cîștig mare pe lungimea de cooperare. Se emite un singur impuls dacă $L \ll L_c$ și mai multe impulsuri dacă $L \simeq L_c$. O problemă importantă corelată cu superfluorescența o reprezintă *„prepararea inversiei inițiale“*.

Dacă în cazul superradianței sistemul are o polarizare macroscopică prin preparare, și emite ca un dipol clasic, în cazul superfluorescenței dipolul macroscopic este creat prin autoorganizare. Prin urmare, excitarea coerentă din cazul superradianței este înlocuită cu excitarea necoerentă (inversie de populație fără polarizare macrosopică). Ideea de bază a unei astfel de excitări aparține lui Skribanowitz care a realizat saturarea incoerentă a două nivele ale unui sistem cu trei nivele utilizînd radiație laser de bandă largă. Astfel, radiația laser avînd $\lambda = 2{,}5$ μm a fost folosită pentru a inversa tranziția rotațională de 84 μm ($v = 1$, $J = 3{,}2$) în HF, obținîndu-se inversie completă între nivelul excitat și nivelul al treilea mai coborît. Ideea a fost utilizată ulterior în realizarea altor experimente importante de superfluorescență care au contribuit la elucidarea mecanismului acesteia.

7.6. Transparența autoindusă

Atunci cînd un impuls laser suficient de intens a cărui durată este mai scurtă decît timpul de relaxare atomică, traversează un mediu de grosime apreciabilă rezonant, deci cu absorbție puternică. mediul devine transparent, efectul neliniar corespunzător fiind cunoscut sub numele de *trnsparență autoindusă*.

Un astfel de efect este pus în evidență cînd un impuls 2π este incident pe un mediu atomic absorbant cu două nivele. Vectorul $\boldsymbol{\rho}$ al matricei densitate pentru sistemul cu două nivele este rotit cu 2π, în două etape, de la 0 la π, radiația incidentă fiind absorbită și de la π la 2π, radiația absorbită fiind reemisă. Ca urmare, se constată transparența substanței, fenomen care diferă esențial de absorbția saturată, în care transmisia nu poate fi niciodată integrală ca în cazul transparenței autoinduse.

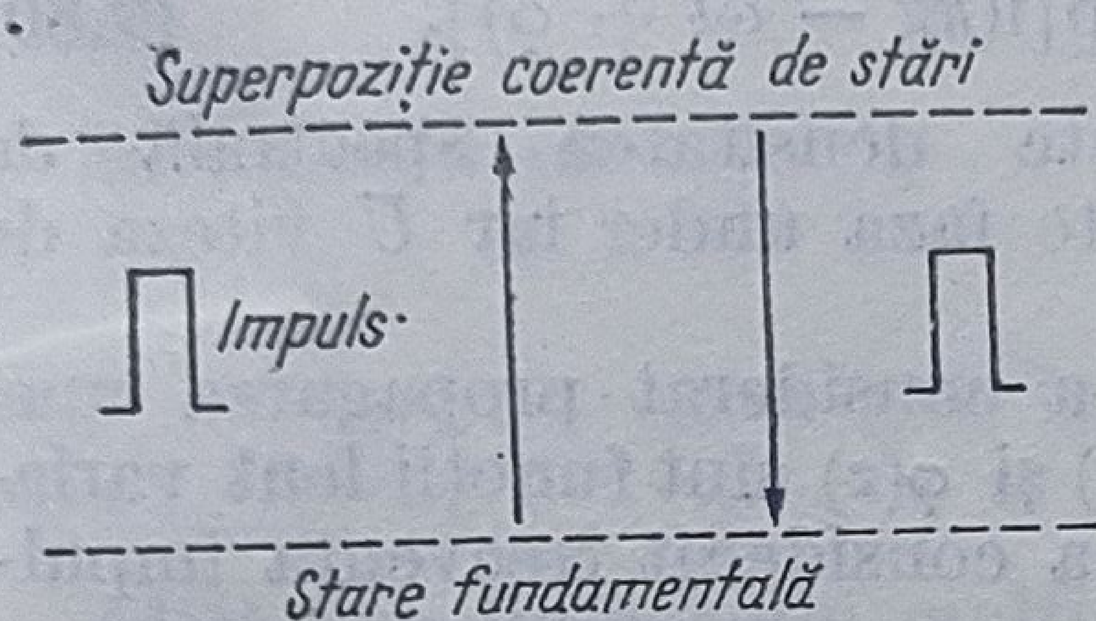


Fig. 7.7

Datorită interacției coerente a mediului cu impulsul 2π de radiație, viteza de propagare a impulsului prin mediu este mult mai scăzută decît cea obișnuită (c/n). Acest lucru se explică prin faptul că energia frontului anterior al impulsului este absorbită pentru a se excita atomii din starea fundamentală într-o superpoziție coerentă de stări (fig. 7.7), fiind redată impulsului prin emisie indusă, provocată de frontul posterior al impulsului. Ca urmare a stocării temporare a energiei impulsului în mediul rezonant, se produce „o întîrziere'' a trecerii sale prin mediu, echivalent cu o reducere semnificativă a vitezei de propagare.

Teoria fenomenului se datorește lui McCall și Hahn [36], care l-au evidențiat prima dată și experimental, la trecerea impulsurilor de cîteva nanosecunde, obținute de la un laser cu rubin, printr-o bară de rubin răcită la temperatura heliului lichid.

Ulterior, fenomenul a fost observat de Gibbs și Slusher în vapori de Rb, utilizînd impulsuri de la un laser cu Hg [301].

Analiza semicuantică a fenomenului a condus la sistemul neliniar de ecuații

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \Upsilon v \tag{7.74}$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} = -\Upsilon u + \varkappa w \mathscr{E} \tag{7.75}$$

$$\frac{\partial w}{\partial t} = -\varkappa v \mathscr{E} \tag{7.76}$$

$$\frac{\partial \mathscr{E}}{\partial z} + \frac{1}{U}\frac{\partial \mathscr{E}}{\partial t} = 2\pi \frac{\omega}{nc} \int_{-\infty}^{+\infty} v(\Upsilon, z, t)\, g(\Upsilon)\, d\Upsilon \tag{7.77}$$

$$\frac{\partial \varphi}{\partial z} \mathscr{E} = 2\pi \frac{\omega}{nc} \int_{-\infty}^{+\infty} u(\gamma, z, t)\, g(\gamma)\, d\gamma \tag{7.78}$$

cunoscute sub numele de *ecuațiile McCall-Hahn*.

În ecuațiile de mai sus $g(\gamma)$ joacă rolul factorului de formă al liniei spectrale lărgite neomogen datorită neomogenităților cîmpului cristalului, sau efectului Doppler în gaze, $\gamma = \Delta\omega$ fiind în acest caz variabilă continuă, u și v reprezintă componentele dispersivă și absorbtivă ale polarizării conform egalității

$$u(\gamma, z, t) + \mathrm{i}v(\gamma, z, t) = N[\langle \mathscr{P}'_x(\gamma, z, t)\rangle + \mathrm{i}\langle \mathscr{P}'_y(\gamma, z, t)\rangle] \quad (7.79)$$

considerate în sistemul de referință rotit (x', y', z') în așa fel încît să fie eliminată dependența de fază a undei

$$\mathscr{E}(z, t) = E'_x + \mathrm{i}E'_y = (E_x + \mathrm{i}E_y)\exp[\mathrm{i}(kz - \omega t + \varphi)], \quad (7.80)$$

$w(\gamma, z, t) = \varkappa W/\omega$ unde $W = N\langle \mathscr{H}_0\rangle$ este densitatea spectrală de energie a excitației mediului activ, $\varphi(z)$ este faza undei iar U viteza de fază a acesteia.

În stabilirea ecuațiilor de mai sus s-a considerat propagarea unei unde polarizată circular, s-a admis că $\mathscr{E}(z, t)$ și $\varphi(z)$ sînt funcții lent variabile, s-a neglijat dependența lui φ de t, s-a considerat frecvența impulsului egală cu cea de rezonanță etc.

Ecuațiile McCall-Hahn admit soluții care atestă existența transparenței autoinduse. Fie o soluție de forma

$$\mathscr{E} = \mathscr{E}(s),\ u = u(\gamma, s),\ v = v(\gamma, s),\ w = w(\gamma, s) \quad (7.81)$$

unde $s = t - z/V$, V fiind viteza de propagare a impulsului în probă.

Integrarea ecuațiilor de mai sus implică condițiile inițiale

$$\lim_{s\to-\infty} u(\gamma, s) = \lim_{s\to-\infty} v(\gamma, s) = \lim_{s\to-\infty} \mathscr{E}(s) = 0 \quad (7.82)$$

$$\lim_{s\to-\infty} w(\gamma, s) = \pm w_0. \quad (7.83)$$

Dacă se admite că toți atomii „răspund în același fel'' la impuls, se poate căuta o soluție cu variabile separabile de forma

$$v(\gamma, s) = v(0, s)\, f(\gamma) \quad (7.84)$$

și analog pentru $u(\gamma, s)$, $f(\gamma)$ fiind un factor dependent de frecvență.

Cu soluția (7.81), ecuația de cîmp (7.77) capătă forma

$$\frac{nc[(1/V) - (1/U)]}{2\pi\omega F}\dot{\mathscr{E}} = -v(0, s) \quad (7.85)$$

unde

$$F = \int_{-\infty}^{+\infty} f(\gamma)\, g(\gamma)\, \mathrm{d}\gamma. \quad (7.86)$$

De asemenea, ecuațiile (7.74) și (7.76) devin

$$\dot{u} = -a\gamma f\mathscr{E}\ ; \quad \dot{w} = \varkappa af\mathscr{E}\dot{\mathscr{E}} \quad (7.87)$$

unde

$$a = \frac{nc[(1/V) - (1/U)]}{2\pi\omega F} \quad (7.88)$$

este un factor nenegativ.

Soluția ecuațiilor de mai sus, la rezonanță ($\gamma = 0$), are forma

$$\mathscr{E}(s) = -\frac{\dot{\varphi}}{\varkappa} = -\frac{2}{\varkappa\tau}\sin\frac{\varphi}{2} \tag{7.89}$$

unde

$$\sin\frac{\varphi}{2} = \operatorname{sech}(s/\tau) \quad \text{și} \quad \varphi(s) = 4\,\mathrm{tg}^{-1}(e^{s/\tau}) \tag{7.90}$$

iar
$$\tau = \sqrt{(a/Np\varkappa)}.$$

Se observă că

$$-\varkappa\int_{-\infty}^{+\infty}\mathscr{E}\left(t - \frac{z}{V}\right)dt = 2\pi \tag{7.91}$$

adică aria impulsului multiplicată cu $\varkappa$ este egală cu 2π, astfel că soluția transparenței autoinduse (7.89) este de tipul „impuls 2π secantă hiperbolică", τ fiind durata impulsului.

Se observă că la rezonanță, vectorul „pendul" al pseudopolarizării rămîne în planul (v, w), întrucît $u(0, s) = 0$, iar unghiul φ măsoară deviația de la poziția verticală de echilibru stabil. În afara rezonanței ($\gamma = 0$) rezultă soluția

$$u(\gamma, z, t) = \frac{2Np\tau\gamma}{1 + \tau^2\gamma^2}\sin\frac{\varphi}{2} \tag{7.92}$$

$$v(\gamma, z, t) = \frac{Np}{1 + \tau^2\gamma^2}\sin\varphi \tag{7.93}$$

$$w(\gamma, z, t) + Np = \frac{\varkappa}{\omega}(W - W_0) = \frac{2Np}{1 + \tau^2\gamma^2}\sin^2\frac{\varphi}{2} \tag{7.94}$$

$$\mathscr{E}(z, t) = -\frac{2}{\varkappa\tau}\sin\frac{\varphi}{2} = -\frac{2}{\varkappa\tau}\operatorname{sech}\left[\frac{1}{\tau}\left(t - \frac{z}{V}\right)\right] \tag{7.95}$$

$$\varphi(z) = k'z + \varphi_0 \tag{7.96}$$

viteza impulsului fiind conform relației (7.88)

$$\frac{1}{V} = \frac{1}{U} + \frac{2\pi\omega}{nc}Np\varkappa\tau^2\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{g(\gamma)}{1 + \tau^2\gamma^2}d\gamma; \tag{7.97}$$

s-a înlocuit

$$f(\gamma) = \frac{1}{1 + \tau^2\gamma^2} \tag{7.98}$$

și s-a ținut seama de condiția de conservare

$$u^2 + v^2 + w^2 = N^2p^2. \tag{7.99}$$

În ecuația (7.96) vectorul de undă, k' are expresia

$$k' = \frac{2\pi\omega}{nc} Np\varkappa\tau^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\gamma g(\gamma)}{1+\tau^2\gamma^2} d\gamma, \tag{7.100}$$

şi ia în considerare modificarea vectorului de undă k, deci a indicelui de refracție datorită prezenței mediului activ.

Pentru o funcție de formă a liniei spectrale $g(\gamma)$ simetrică, $\varphi = 0$. Ecuațiile (7.92) — (7.94) exprimă faptul că în evoluția sa sistemul atomic pleacă din starea fundamentală ($u = 0$, $v = 0$, $W = W_0$), trece prin excitare înt-o superpoziție de stări coerentă și revine apoi în starea fundamentală. Înmagazinarea temporală a energiei impulsului de către sistemul atomic determină scăderea vitezei de propagare a impulsului în mediu conform relației (7.97).

Observație. Din analiza condiției inițiale (7.83) rezultă că valoarea w_0 corespunde mediului aflat inițial în starea fundamentală pe cînd soluția $-w_0$ corespunde mediului aflat inițial în starea cu toți atomii excitați.

În al doilea caz, un impuls care se propagă prin mediu va fi amplificat, datorită energiei atomilor rezonanți care trec în starea fundamentală.

Se poate arăta că cele două tipuri de soluții ale ecuațiilor lui McCall-Hahn discutate mai sus, satisfac principiul cauzalității (viteza de semnal este mai mică decît viteza luminii).

7.7. Bistabilitatea optică

7.7.1. Introducere

Bistabilitatea optică reprezintă un fenomen optic cooperativ corelat cu absorbția (fig. 7.1) care este pus în evidență la transmisia luminii printr-o cavitate optică în care este situat un mediu atomic rezonant, astfel că, în anumite condiții, intensitatea transmisă prezintă două stări stabile pentru aceeași intensitate de intrare.

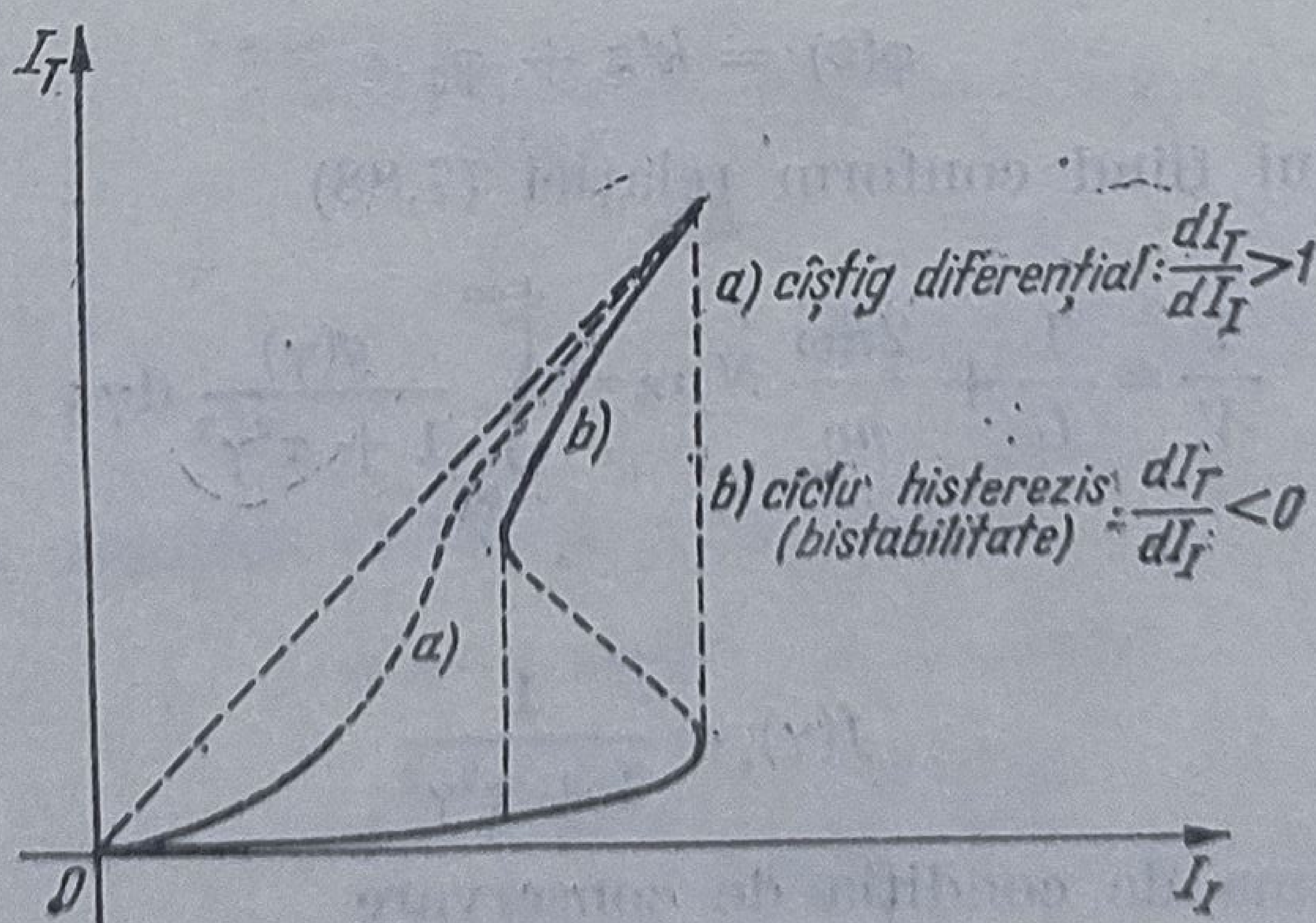


Fig. 7.8.

Un astfel de sistem este constituit sub formă tipică, de un rezonator Fabry-Pérot umplut cu un mediu atomic avînd indicele de refracţie dependent de intensitate (interferometru neliniar), a cărui caracteristică intrare-ieşire poate prezenta *cîştig diferenţial* mai ridicat decît unitatea sau *ciclu histerezis* (fig. 7.8).

Existenţa neliniarităţilor, care caracterizează mediul atomic, şi a reacţiei optice asigurată de oglinzile cavităţii sînt fundamentale pentru evidenţierea fenomenului de bistabilitate optică.

În cazul prezentat, al asigurării reacţiei pe cale optică, bistabilitatea se numeşte *intrinsecă*. Dacă reacţia se realizează cu ajutorul unui semnal electric obţinut prin detectarea semnalului optic de ieşire şi aplicarea sa pe dispozitiv, comportarea bistabilă corespundezătoare se numeşte *hibridă*. Există două cazuri, cel al interfeţei neliniare şi cel bazat pe autofocalizare în care bistabilitatea optică intrinsecă nu necesită rezonator. Funcţie de parametrii caracteristici ai sistemului care prezintă bistabilitate intrinsecă, aceasta poate fi : *absorbtivă*, *dispersivă* sau *absorbtiv-dispersivă*.

Studiile asupra bistabilităţii optice intrinseci se referă în principal la două tipuri de sisteme : cu cavitate Fabry-Pérot şi cu cavitate în inel, astfel că în continuare, principalele rezultate ale analizei vor caracteriza aceste tipuri de sisteme.

În numeroase lucrări se evidenţiază şi faptul că bistabilitatea optică poate fi tratată prin analogie cu tranziţiile de fază de speţa I, pentru sistemele staţionare la neechilibru.

După descoperirea bistabilităţii optice de către Szöke şi alţii în 1969 [88], primele studii în acest domeniu au fost făcute de către Mc Call [89] care a tratat bistabilitatea optică absorbtivă în cavităţi Fabry-Pérot utilizînd ecuaţiile Maxwell-Bloch. Ulterior, Gibbs şi alţii [325] au evidenţiat experimental bistabilitatea optică în vapori de sodiu. Aceste rezultate au stimulat cercetările teoretice şi experimentale asupra bistabilităţii optice intrinseci. Putem menţiona în acest sens contribuţiile datorate lui Bonifacio şi Lugiato [90], Meystre [326], Carmichael şi Herman [327], Agrawall şi alţii [100], precum şi experimentele efectuate de Sandle, Gallagher şi alţii [328].

Pentru prima dată a fost propus un dispozitiv bistabil hibrid de către Kastalski [35], primele dispozitive bistabile hibride experimentale fiind realizate de către Smith şi Turner [329, 330] şi cam în acelaşi timp de către Garmire şi alţii [331].

Lucrări experimentale ulterioare raportează punerea în evidenţă a fenomenului de bistabilitate optică în medii semiconductoare şi în structuri integrate.

În ţara noastră se fac cercetări de bistabilitate optică intrinsecă şi hibridă, în mai multe laboratoare, unele dintre rezultate fiind prezentate în lucrările [91—99], [332—340] şi [393—396].

7.7.2. Aspecte fenomenologice ale bistabilității optice

Să considerăm o cavitate Fabry-Pérot în care se găsește un sistem atomic saturabil (fig. 7.9). Fie I_I intensitatea luminii incidente, I_c intensitatea luminii din cavitate, I_s intensitatea de saturație, iar I_T intensitatea transmisă.

La intensități scăzute ale luminii incidente ($I_c < I_s$), absorbția împiedică interferența constructivă (la rezonanță) în interiorul cavității Fabry-Pérot, astfel încît se poate scrie

$$I_T \simeq TI_c \simeq I_I T^2 \tag{7.101}$$

unde T este transmisivitatea oglinzilor rezonatorului.

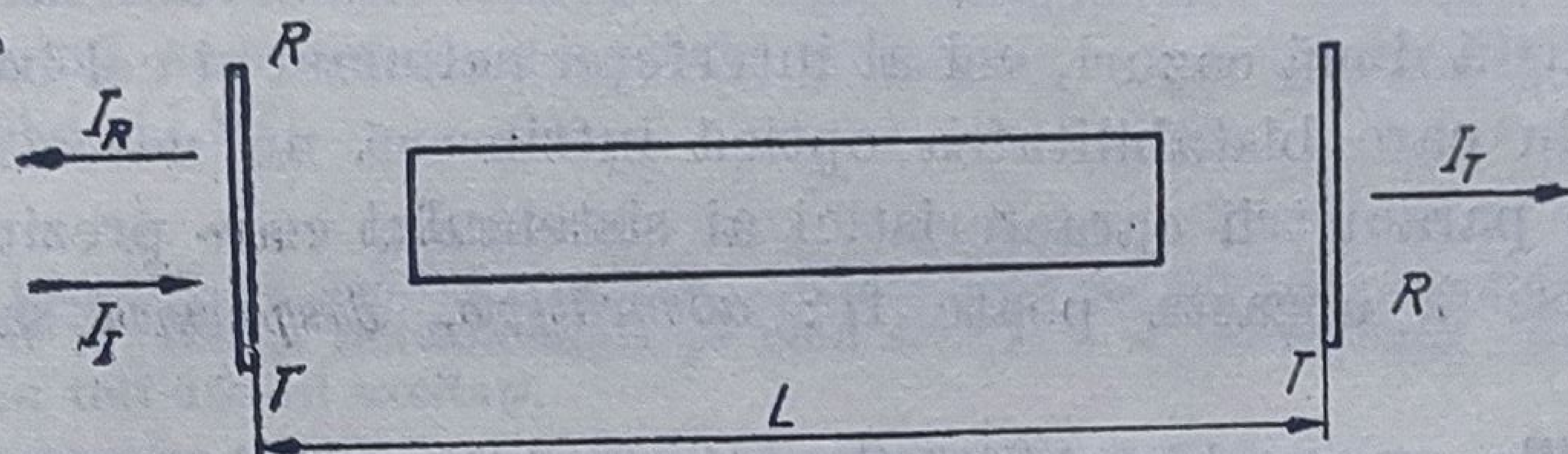


Fig. 7.9.

Pentru intensități de intrare ridicate ($I_c > I_s$) absorbantul se saturează și se produce interferența constructivă în rezonator, astfel încît

$$I_I = I_T \quad \text{și} \quad I_c = I_I/T \tag{7.102}$$

Condițiile

$$I_s > I_I T \quad \text{și} \quad I_s < I_I T \tag{7.103}$$

sînt îndeplinite pentru un interval relativ larg de valori I_I (de exemplu, pentru $I_I = I_s$), astfel că transmisia sistemului are o comportare bistabilă.

Această comportare bistabilă, prezisă de Szöke și alții (1969) se referă la răspunsul neliniar al mediului, provocat de absorbție (bistabilitate absorbtivă).

Bistabilitatea optică poate fi evidențiată calitativ și în cazul mediilor dispersive, în care se neglijează absorbția (bistabilitate dispersivă).

Se știe că transmisivitatea T_c a unei cavități Fabry-Pérot de lungime L (fig. 7.9) în care este situat un material liniar cu indicele de refracție n are expresia

$$T_c = \frac{I_T}{I_I} = \frac{1}{1+F\sin^2\varphi/2} \tag{7.104}$$

unde $F = 4\,R/T$ este *finețea*, R este reflectivitatea oglinzilor ($R + T = 1$), iar $\varphi = \frac{4\pi}{\lambda} nL$ este schimbarea de fază pentru un parcus dus-întors prin cavitate al radiației avînd lungimea de undă λ.

Dacă indicele de refracție al mediului este neliniar

$$n(I_c) = n_0 + n_2 I_c \tag{7.105}$$

atunci, funcţie de intensitate, se poate obţine o schimbare a drumului optic astfel încît pentru $\varphi = 2\pi N$(N — întreg) rezultă o transmisivitate a cavităţii $T_c = 1$.

Dacă la $I_I = 0$, dezacordul cavităţii este θ $\left(\varphi = \frac{4\pi n_0 L}{\lambda} = 2\pi N - \theta\right)$, pe măsura creşterii intensităţii incidente, φ se apropie de rezonanţă, şi θ scade. La o valoare critică $I_I = I_{prag}$, se produce un efect în avalanşă (creşterea lui φ determină creşterea lui I_c şi viceversa), care determină un salt în intensitatea transmisă I_T (de la o valoare scăzută la una ridicată). Prin descreşterea lui I_I, valoarea ridicată a lui I_c păstrează defazajul φ în jurul valorii $2\pi N$ deşi I_I scade sub valoarea $I_{prag.}$, după care transmisivitatea cavităţii scade brusc, astfel încît caracteristica $I_T(I_I)$ prezintă ciclu histerezis (fig. 7.10).

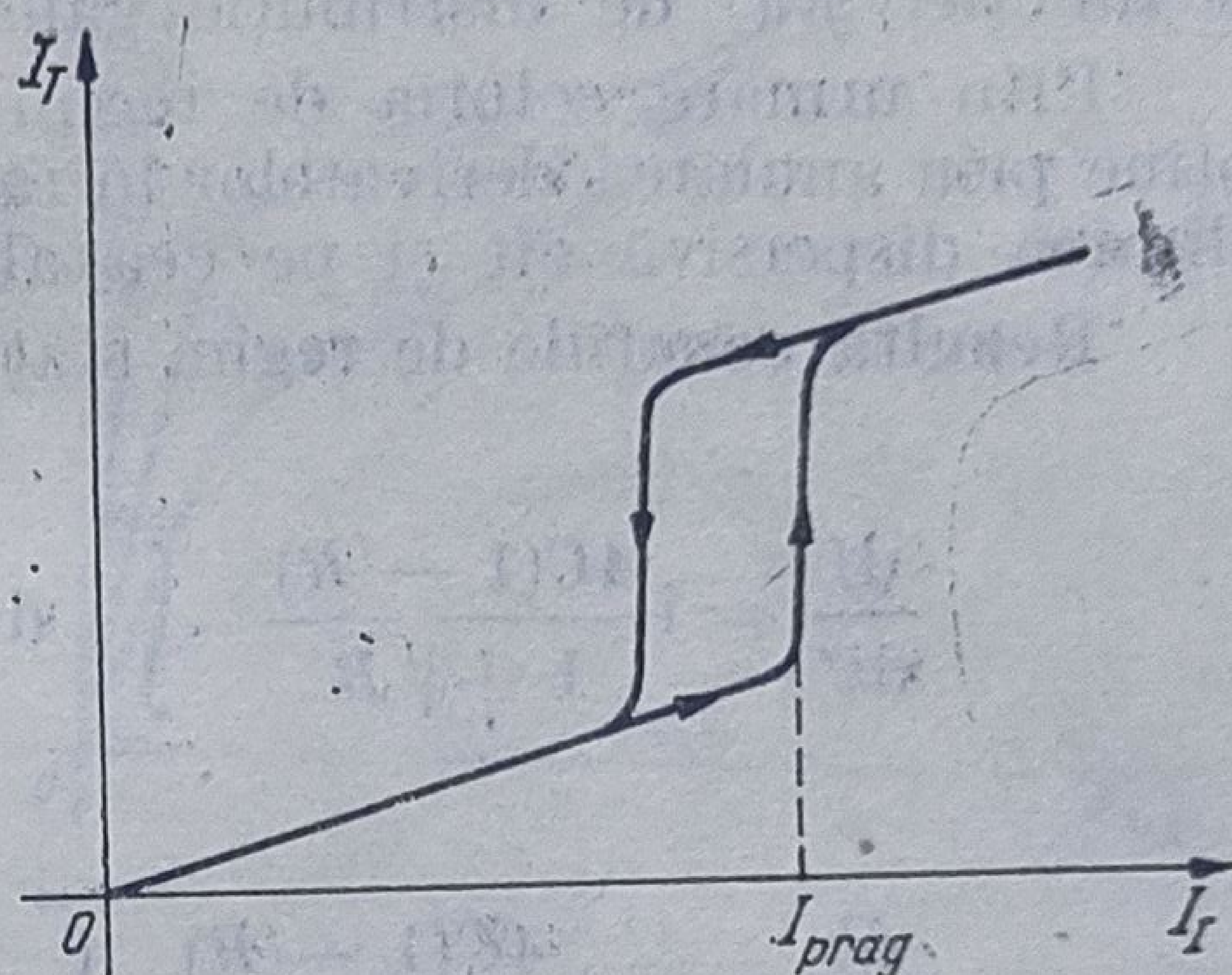


Fig. 7.10

Prin urmare, funcţie de condiţiile de interferenţă, determinate de neliniarităţile mediului, în cavitate se poate înmagazina o cantitate de energie optică ridicată sau scăzută, astfel că este posibilă apariţia histerezisului.

Ţinîndu-se seama de dezvoltările

$$\chi' \simeq \frac{1}{\Delta\omega} - \frac{1}{\Delta\omega^3} I/I_s + \ldots \tag{7.106}$$

şi

$$\chi'' \simeq \frac{1}{\Delta\omega^2} - \frac{1}{\Delta\omega^4} I/I_s + \ldots \tag{7.107}$$

pentru partea reală respectiv cea imaginară a susceptibilităţii electrice funcţie de raportul I/I_s, unde $\Delta\omega$ este dezacordul ($\Delta\omega \gg 1$), se poate constata rolul predominant al dispersiei ($\Delta\omega^{-3}$) în raport cu cel al absorbţiei neliniare ($\Delta\omega^{-4}$) ca proces interferometric. Totuşi trebuie avut în vedere rolul absorbţiei liniare, care devine importantă cu creşterea lungimii cavităţii şi poate împiedica apariţia efectului de bistabilitate deşi neliniaritatea dispersivă creşte odată cu lungimea cavităţii.

7.7.3. Teoria semicuantică a bistabilităţii optice

Dacă pentru explicarea unor fenomene cum ar fi superfluorescenţa, care este cauzată de fluctuaţii, teoria semicuantică nu este satisfăcătoare, în cazul bistabilităţii optice această teorie conduce la rezultate

importante după cum se va arăta în continuare. Trecerea de la teoria cuantică la cea semicuantică înseamnă, după cum se știe, neglijarea corelațiilor fluctuațiilor, prin considerarea valorii medii a produsului operatorilor ca produsul valorilor medii, operație echivalentă cu descrierea clasică a cîmpului.

a) *Studiul regimului staționar al bistabilității optice.* Pentru studiul regimului staționar al bistabilității optice se utilizează ecuațiile Maxwell-Bloch (4.201)—(4.205), care au fost stabilite în cazul general astfel încît este inclus dezacordul atomic ($\Delta \neq 0$), dezacordul cavității ($\theta \neq 0$) și se ține seama de linia lărgită neomogen ($\sigma \neq 0$), σ intervenind în expresia funcției $g(u)$ de distribuție gaussiană.

Prin urmare, soluția de regim staționar a acestor ecuații care se obține prin anularea derivatelor în raport cu timpul, va descrie atît bistabilitatea dispersivă cît și pe cea absorbtivă (Δ, θ, $\sigma \neq 0$).

Rezultă ecuațiile de regim staționar [235]

$$\frac{\mathrm{d}f}{\mathrm{d}z'} = \mathrm{i}\,\frac{4C(1-R)}{1+\sqrt{R}} \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}u\; g(u)\; P_+^*(f, f^*, b, b^*, \tilde{\Delta}, u) \qquad (7.108)$$

$$\frac{\mathrm{d}b}{\mathrm{d}z'} = -\mathrm{i}\,\frac{4C(1-R)}{1+\sqrt{R}} \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}u\; g(u)\; P_-^*(f, f^*, b, b^*, \tilde{\Delta}, u) \qquad (7.109)$$

unde s-au utilizat notațiile

$$f = \frac{d}{\hbar}\sqrt{T_1T_2}\,E_+\,; \quad b = \frac{d}{\hbar}\sqrt{T_1T_2}\,E^-\,;$$

$$x = \frac{\sqrt{3}\,d}{\hbar}\,\frac{\sqrt{T_1T_2}}{\sqrt{1-R}}\,E_T\,; \quad y = \frac{\sqrt{3}\,d}{\hbar}\,\frac{\sqrt{T_1T_2}}{\sqrt{1-R}}\,E_I\,; \qquad (7.110)$$

$z' = z/L$; $\tilde{\Delta} = \Delta T_2$ iar $C = \frac{1}{2}(1+\sqrt{R})\,dg/\hbar\; T_2^{-1}$ este *factorul de cooperativitate.* Se observă că $C = \alpha L/2(1-R)$ pentru $R \lesssim 1$, unde $\alpha = dgT_2/\hbar$ este coeficientul de absorbție liniar.

Prin integrarea numerică a ecuațiilor (7.108) și (7.109) și reprezentarea grafică a curbelor $|x|^2 \sim I_T$ și $|y|^2 \sim I_I$ se obțin caracteristicile de bistabilitate de regim staționar de tipul celor prezentate calitativ în figura 7.8. Pentru diferite valori ale parametrilor σ și θ se poate evidenția efectul lărgirii neomogene a liniei și dezacordului cavității asupra comportării bistabile. Pentru valori ridicate ale parametrilor αL și $\tilde{\Delta}$ se obține o comportare *multistabilă* a sistemului. Contribuții importante în studiul regimului staționar al bistabilității optice intrinseci în cavități Fabry-Pérot sînt prezentate în lucrările [90, 95, 100].

b) *Bistabilitatea optică în aproximația cîmpului mediu.* Ecuațiile (4.219) — (4.221) obținute de Bonifacio și Lugiato în aproximația cîmpului mediu [90] permit evidențierea caracteristicilor de bistabilitate pentru cazul absorbtiv ($\tilde{\Delta} = \sigma = \theta = 0$) sub o formă simplă.

Astfel, anulînd derivatele în raport cu timpul în ecuațiile (4.219) — (4.221) și utilizînd notațiile (7.110) rezultă caracteristica statică de bistabilitate

$$y = x + \frac{2Cx}{1+x^2} \tag{7.111}$$

reprezentată grafic în figura 7.11.

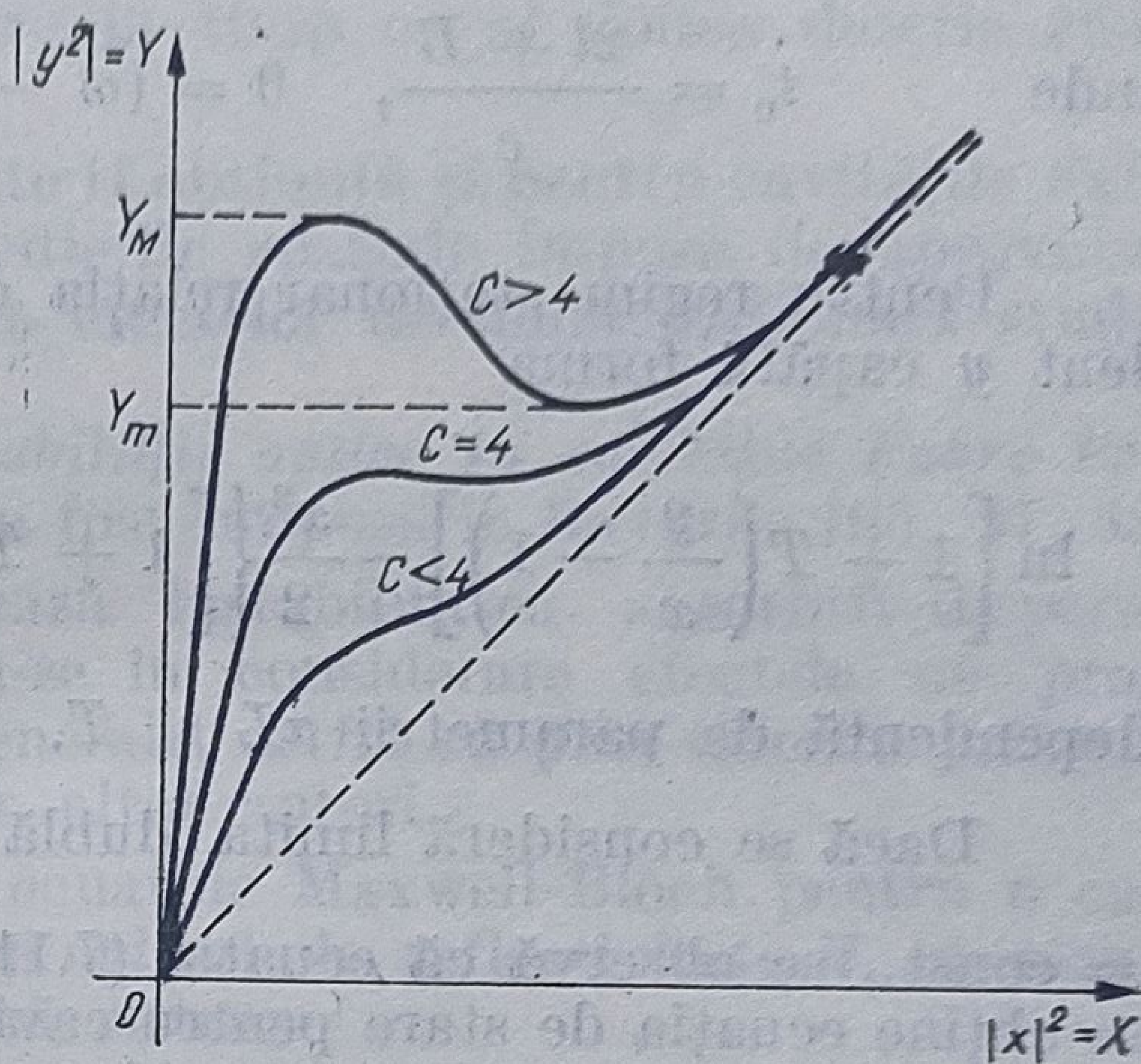


Fig. 7.11

Din studiul acestei caracteristici pentru diferite valori ale parametrului C rezultă comportarea bistabilă pentru $C>4$. Valoarea critică $C = 4$ rezultă din condițiile $\frac{dy}{dx} = \frac{d^2y}{dx^2} = 0$, adică caracteristica să prezinte la limită un punct de maxim suprapus cu un punct de inflexiune.

Totodată, rezultă pentru punctele de maxim și de minim ale caracteristicii (pragurile de bistabilitate) coordonatele

$$(x_m, y_m) \simeq (\sqrt{2}\,C, \sqrt{8}\,C)\,; \quad (x_M, y_M) \simeq (1, C+1).$$

O soluție analitică completă a fost obținută de către Bonifacio și Lugiato [343] pentru o cavitate în inel, pentru a fi evitate dificultățile ridicate de efectul de undă staționară din cavitățile Fabry-Pérot (fig. 7.12).

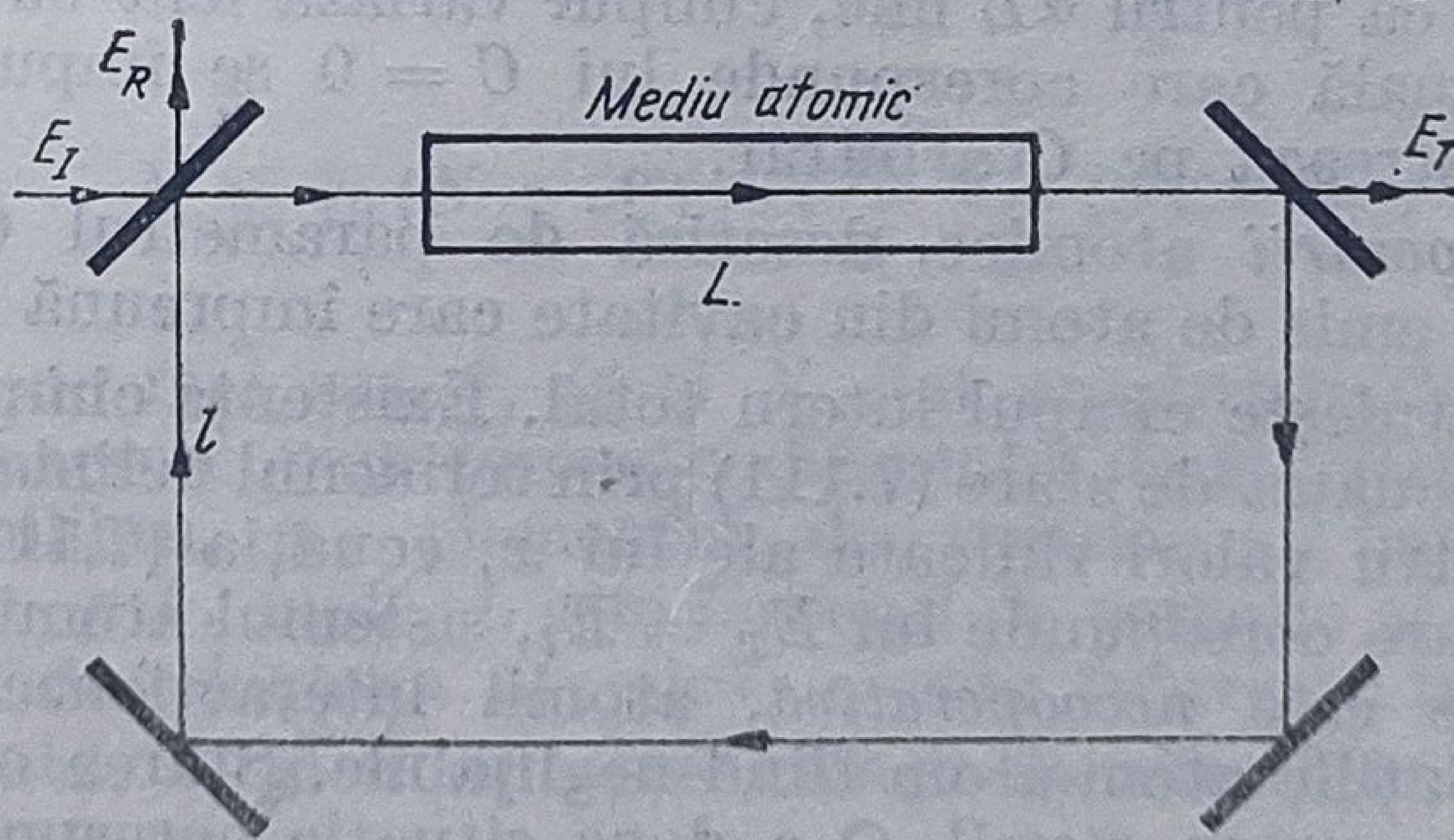


Fig. 7.12

Ecuațiile Maxwell-Bloch pentru o cavitate în inel au forma

$$\frac{\partial P_+}{\partial t} = -\left(\frac{1}{T_2} - i\Delta\right)P_+ + \frac{id}{\hbar}E_+D_0 \tag{7.112}$$

$$\frac{\partial D_0}{\partial t} = \frac{D_0+1}{T_1} + \frac{id}{\hbar}(E_+^*P_+ - E_+P_+^*) \tag{7.113}$$

$$\frac{1}{c}\frac{\partial E_+}{\partial t} + \frac{\partial E_+}{\partial z} = igP_+^* \tag{7.114}$$

fiind valabile condiţiile la limita

$$E_+(0, t) = \sqrt{1-R}\, E_I(t) + RE(L, t - t_0) \exp(i\theta) \qquad (7.115)$$

$$E_T(t) = \sqrt{1-R}\, E(L, t)$$

unde $$t_0 = \frac{2l + L}{c}, \quad \theta = (\omega - \omega_c)\, \bar{L}/c, \quad \bar{L} = 2(L + l).$$

Pentru regim staţionar relaţia dintre cîmpurile transmis x şi incident y capătă forma

$$\ln\left[1 + T\left(\frac{y}{x} - 1\right)\right] - \frac{x^2}{2}\left\{\left[1 + T\left(\frac{y}{2} - 1\right)\right]^2 - 1\right\} = \alpha L \qquad (7.116)$$

dependentă de parametrii αL şi T.

Dacă se consideră limita dublă $T \to 0$ şi $\alpha L \to 0$ cu $\frac{\alpha L}{2T} = C =$ $=$ const., se observă că ecuaţia (7.116) devine identică cu (7.111) adică se obţine ecuaţia de stare pentru cavităţile în inel. O astfel de ecuaţie de stare a fost obţinută din considerente fenomenologice de către Szöke pentru cavităţile Fabry-Pérot. O tratare mai completă însă a interacţiei din cavităţile Fabry-Pérot, cu considerarea efectului de undă staţionară, conduce la o ecuaţie de stare diferită deşi se utilizează aproximaţia cîmpului mediu. De menţionat că, chiar pentru o cavitate Fabry-Pérot, ecuaţia de stare (7.111) constituie o bună aproximaţie numai dacă se modifică definiţiile mărimilor x şi y şi C.

Condiţia $\alpha L \to 0$ înseamnă că în aproximaţia cîmpului mediu, variaţiile spaţiale ale cîmpului (după direcţia z) pot fi neglijate, fapt justificat de faptul că pentru αL mic, cîmpul variază lent cu z. Pentru a se evita soluţia banală care corespunde lui $C = 0$ se impune şi condiţia $T \to 0$, care păstrează pe C arbitrar.

Cauza *cooperării* atomice, descrisă de parametrul C, o constituie *cîmpul de reacţie* emis de atomi din cavitate care împreună cu cîmpul incident $E_I/\sqrt{T}$ alcătuieşte cîmpul intern total. Existenţa cîmpului de reacţie este descrisă în ecuaţia de stare (7.111) prin termenul neliniar $2\, Cx/(1+x^2)$. Într-adevăr pentru valori ridicate ale lui x, ecuaţia (7.111) se reduce la soluţia $x = y$ care corespunde lui $E_T = E_I$, sistemul atomic fiind saturat. Această situaţie este *necooperativă*, atomii interacţionează cu radiaţia individual, corelaţiile atom-atom fiind neglijabile. Starea corespunzătoare se mai numeşte *„cu un atom"*. O a doua situaţie corespunde valorilor x mici pentru care $y = (2C + 1)\, x$, adică răspunsul sistemului este liniar, fiind nesaturat. În acest caz există corelaţii puternice atom-atom descrise de C, astfel că starea se numeşte *„cooperativă"*.

Tratarea bistabilităţii optice dispersive în cavităţile în inel a condus în aproximaţia cîmpului mediu la urmărtoarea ecuaţie de stare în cazul lărgirii omogene a liniei

$$|y|^2 = |x|^2\left[\left(1 + \frac{2C}{1 + \tilde{\Delta}^2 + |x|^2}\right) + \left(\tilde{\theta} - \frac{2C\tilde{\Delta}}{1 + \tilde{\Delta}^2 + |x|^2}\right)^2\right] \qquad (7.117)$$

unde $\tilde{\theta} = \theta/(1 - R)$. Pentru a fi valabilă aproximația cîmpului mediu și în cazul dispersiv se impune condiția suplimetară $\theta \to 0$ cu $\theta/(1 - R) = $ const.

De observat că primul termen din paranteză, în expresia (7.117), descrie efectul absorbției neliniare în timp ce al doilea descrie efectul dispersiei neliniare.

Ecuația de stare (7.117) poate fi obținută și pentru cavitățile Fabry-Pérot [235]. De remarcat că medierile spațiale impuse de aproximația cîmpului mediu implică neglijarea efectelor de undă staționară studiate în lucrările [95, 351, 352].

c) *Metodă de tratare a bistabilitții optice în cavitățile Fabry-Pérot.* Metoda prezentată în continuare a fost propusă în lucrările [95, 97, 335].

Conform metodei se tratează bistabilitatea absorbtiv-dispersivă în cavitățile Fabry-Pérot, luîndu-se în considerare efectele de propagare. Rezultatele obținute sînt generale, astfel că prin diferite particularizări acestea coincid cu cele ale altor autori.

i) În prima etapă se obțin ecuațiile Maxwell-Bloch pentru o cavitate Fabry-Pérot de lungime L și oglinzi de reflectivitate R, în care se găsește un sistem atomic cu două sisteme

$$E_a = -\frac{1}{2}\hbar\omega_0 \quad \text{și} \quad E_b = \frac{1}{2}\hbar\omega_0$$

sub forma

$$\dot{\mathscr{E}} + \frac{1}{2}\frac{c}{n}\frac{1}{ik}\left[\frac{\partial^2\mathscr{E}}{\partial z^2} + (\alpha' - ik)\mathscr{E}\right] = ig\mathscr{S} \tag{7.118}$$

$$\dot{\mathscr{S}} + (\gamma_\perp - i\Delta\omega)\mathscr{S} = \frac{ip'}{\hbar}N\mathscr{E} \tag{7.119}$$

$$\dot{N} + \gamma_{\parallel}(N - \mathscr{N}) = i\frac{p'}{\hbar}\frac{1}{2}(\mathscr{S}\mathscr{E}^* - \mathscr{S}^*\mathscr{E}). \tag{7.120}$$

În ecuațiile de mai sus $\mathscr{E}$, $\mathscr{S}$ și N sînt amplitudinile cîmpului electric, polarizării macroscopice respectiv diferenței de populație, $\mathscr{N}$ este valoarea lui N la echilibru, p — elementul de matrice al momentului de dipol electric, $p' = p\,L$, unde L este factorul de corecție al lui Lorentz, $\gamma_\perp$ și $\gamma_\parallel$ sînt ratele de relaxarea atomică, ω este frecvența radiației considerată plan polarizată, α' și n sînt coeficienții de absorbție, respectiv indicele de refracție pentru tranzițiile nerezonante, $k = \frac{\omega n}{c}$, $\Delta\omega = \omega - \omega_0$, $g = \omega p/2\varepsilon$, celelalte mărimi avînd semnificațiile cunoscute.

În stabilirea acestor ecuații s-au făcut aproximațiile $|\dot{\mathscr{E}}| \ll \omega|\mathscr{E}|$, $|\dot{\mathscr{S}}| \ll \omega|\mathscr{S}|$ și s-au neglijat termenii variind cu frecvența 2ω în ecuația de populație. Cu notațiile de mai sus, condițiile la limită pentru cavitatea Fabry-Pérot se scriu astfel

$$\mathscr{E}_+(0, t) = \sqrt{R}\,\mathscr{E}_-(0, t) \tag{7.121}$$

$$\mathscr{E}_-(L, t)\,e^{-ikL} = \sqrt{R}\,\mathscr{E}_+(L, t)\,e^{ikL} + \sqrt{T}\,\mathscr{E}_I(t) \tag{7.122}$$

S-a considerat următoarea expresie a cîmpului cavității

$$\mathscr{E}(z, t) = \mathscr{E}_+(z, t)\, e^{ikz} + \mathscr{E}_-(z, t)\, e^{-ikz} \tag{7.123}$$

$\mathscr{E}_+$ fiind amplitudinea undei directe, iar $\mathscr{E}_-$ amplitudinea undei inverse. Pentru regim staționar se obține ecuația de cîmp

$$\frac{d^2E}{d\zeta^2} + \left[\varkappa^2 + \varkappa\left(\frac{i\alpha_0 - \beta_0}{1 + |E|^2} + i\alpha'\right)L\right]E = 0 \tag{7.124}$$

unde E este amplitudinea rapid variabilă a cîmpului intern raportată la cîmpul de saturație

$$\mathscr{E}_s = \frac{h}{p'}\left[\frac{\gamma_{\parallel}(\Delta\omega^2 + \gamma_{\perp}^2)}{\gamma_{\perp}}\right]^{1/2}, \tag{7.125}$$

$$\alpha_0 = \frac{2}{\hbar c} g n \mathscr{N} p' \frac{\gamma_{\perp}}{\Delta\omega^2 + \gamma_{\perp}^2}, \tag{7.126}$$

$$\beta_0 = \frac{\Delta\omega}{\gamma_{\perp}}\alpha_0 = \alpha_0\delta; \tag{7.127}$$

iar

$$\zeta = \frac{z}{L}, \quad \varkappa = kL. \tag{7.128}$$

Prin urmare, spre deosebire de modelele obișnuite ale bistabilității optice, se obține pentru cîmp, ecuația diferențială de ordinul al doilea (7.124), (în loc de o ecuație diferențială de ordinul întîi), astfel încît din aceasta rezultă distribuția efectivă a cîmpului electric în cavitate.

Fenomenul de bistabilitate optică este determinat de factorul multiplicativ notat cu B al soluției ecuației (7.124)

$$B = |1 - Re^{-2\varkappa_1''} e^{i2\varkappa_1'}| \tag{7.129}$$

unde

$$\varkappa_1 = \varkappa_1' + i\varkappa_1'' = \varkappa - \frac{\beta L}{2} + \frac{i(\alpha + \alpha')}{2} \tag{7.130}$$

iar

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 + |E|^2} \quad \text{și} \quad \beta = \frac{\beta_0}{1 + |E|^2}. \tag{7.131}$$

Atunci cînd bistabilitatea este determinată de partea reală $\varkappa_1'$ a lui $\varkappa_1$, este de tip dispersiv, iar cînd este determinată de partea imaginară $\varkappa_1''$ a lui $\varkappa_1$, este de tip absorbtiv.

În cazul particular al aproximației cîmpul mediu ($\alpha_0 L \ll 1$ și $\delta\alpha_0 L \ll 1$) caracteristica de bistabilitate depinde numai de factorul de cooperativitate C a lui Bonifacio.

ii) În aproximația amplitudinilor lent variabile $\left(\text{de exemplu, } \left|\frac{\partial E_+}{\partial\zeta}\right| \ll \varkappa|E_+|\right)$, din rezolvarea ecuațiilor Maxwell-Bloch rezultă în apro-

ximaţia cîmpului mediu următoarea caracteristică de transmisie a rezonatorului Fabry-Pérot :

$$y^2 = x^2 \left\{ \frac{1}{T^2} \left[1 + R^2 - 2R\cos\left(\frac{\alpha_0 L\delta}{1 + (1+R)x^2} - 2\Phi \right) \right] + \right.$$

$$\left. + (1+R)\frac{4C}{1+(1+R)x^2} + \frac{1+3R^2}{4}\left(\frac{4C}{1+(1+R)x^2} \right)^2 \right\}. \qquad (7.132)$$

Această expresie este în concordanţă cu caracteristica de bistabilitate stabilită de către Agrawall şi Carmichael pentru valori mici ale dezacordului atomic ($\alpha_0 L\delta \ll 1$)

$$y^2 = x^2 \left[\left(1 + \frac{4C^2}{1+2x^2} \right)^2 + \left(\frac{4C\delta}{1+2x^2} - \frac{2\Phi}{T} \right)^2 \right\}. \qquad (7.133)$$

şi cu caracteristica lui Gibbs şi McCall, pentru bistabilitatea dispersivă

$$y^2 = \frac{x^2}{T^2}\,[1 + R^2 - 2\,R\cos(2\theta - 2\Phi)], \qquad (7.134)$$

fiind mai generală. Totodată, caracteristica (7.132) este mai simplă în raport cu expresiile analitice obţinute de Carmichael şi Hermann folosind ,,ierarhia trunchiată Bloch''.

Atunci cînd $\alpha_0 L\delta \ll 1$, din (7.132) se obţin expresii simple pentru Y_M, respectiv y_m. Astfel pentru bistabilitatea pur absorbtivă rezultă

$$Y_{MA} \simeq \sqrt{2}\,C; \quad y_{mA} \simeq 2\sqrt{C}[(1+\varphi^2)^{1/2} + 1]^{1/2} \qquad (7.135)$$

Analog pentru bistabilitatea dispersivă se obţine

$$Y_{MD} \simeq \sqrt{2}C\delta; \qquad y_{mD} \simeq 2\sqrt{C\delta}\,[(1+\varphi^2)^{1/2} - \varphi]^{1/2} \qquad (7.136)$$

unde $\varphi = 2\Phi/T$.

Validitatea caracteristicii (7.132) obţinută în aproximaţia cîmpului mediu (MFL) poate fi testată comparînd rezultatele sale cu cele corespunzătoare ecuaţiilor lui McCall şi Gibbs, integrate numeric (NS) pentru orice valoare $\alpha_0 L$, astfel că sînt luate în considerare efectele de propagare în cavitatea Fabry-Pérot (fig. 7.13).

Se verifică concordanţa celor două tipuri de rezultate pentru valori $\alpha_0 L \ll 1$, condiţie utilizată în stabilirea caracteristicii (7.132).

iii) Modelele teoretice de bistabilitate prezentate mai sus pot fi utilizate pentru definirea şi calculul celor mai importanţi parametri de amplificare ai dispozitivelor optice bistabile, cum sînt amplificarea de semnal mic, amplificarea în impuls, răspunsul în timp etc.

Astfel, amplificarea de semnul mic este definită prin expresia

$$A_s = \frac{\delta x}{\delta y} \tag{7.137}$$

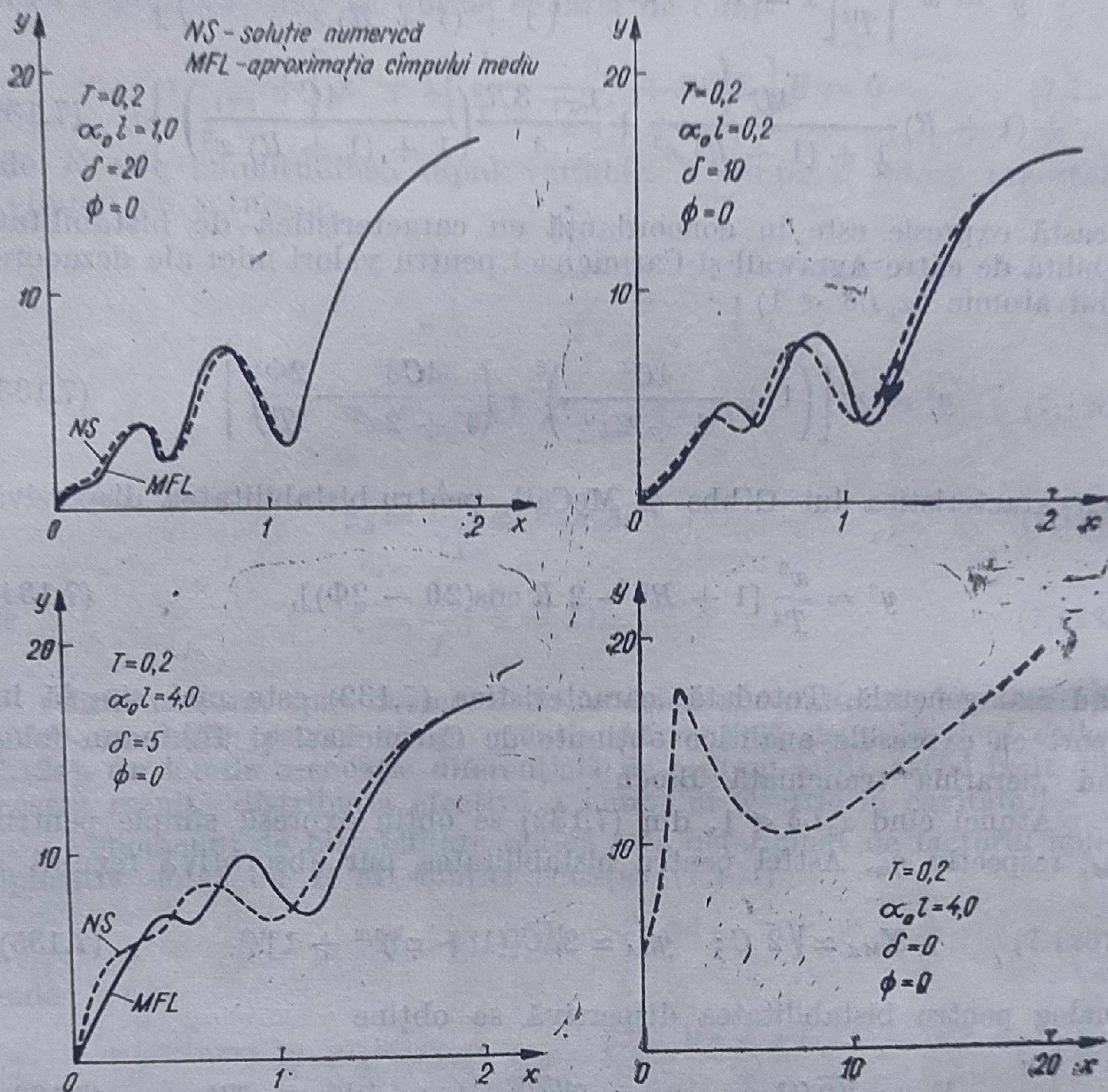


Fig. 7.13

unde δx și δy sînt variații mici în jurul valorilor de regim staționar x_0 și y_0. Se obține

$$A_s(\omega) = \left\{ 1 + i\frac{\omega}{K} - 2C \frac{x_0^2 - \left(1 + i\frac{\omega}{2qK}\right)}{(x_0^2 + 1)\left[x_0^2 + \left(1 + i\frac{\omega}{qK}\right)\left(1 + i\frac{\omega}{2qK}\right)\right]} \right\}^{-1} \tag{7.138}$$

unde
$$K = \frac{To}{2L}, \text{ iar } q = \frac{\gamma_\perp}{K} = \frac{\gamma_\parallel}{2K}.$$

În mod asemănător se obține pentru amplificarea maximă în impuls expresia

$$A_t = \frac{\dfrac{\left(1+\dfrac{2C}{C-\sqrt{C^2-4C}}\right)}{(C-1-\sqrt{C^2-4C})^{1/2}} - \dfrac{\left(1+\dfrac{2C}{C+\sqrt{C^2-4C}}\right)}{(C-1+\sqrt{C^2-4C})^{1/2}}}{\left(1+\dfrac{2C}{C-\sqrt{C^2-4C}}\right)(C-1-\sqrt{C^2-4C})^{1/2} - \left(1+\dfrac{2C}{C+\sqrt{C^2-4C}}\right)(C-1+\sqrt{C^2-4C})^{1/2}} \tag{7.139}$$

Răspunsul în timp al dispozitivelor de acest tip a fost de asemenea calculat în lucrarea [93] prin integrarea ecuației diferențiale a evoluției dispozitivului, pentru un impuls unitar aplicat la intrare la momentul $t = 0$.

d) *Fenomene dependente de timp.* i) Pentru studiul complet al stabilității dispozitivelor avînd caracteristici de tipul celor prezentate în fig. 7.8 se aplică metoda generală de analiză liniară a stabilității sistemelor. Astfel dacă P_∞ și D_∞ și E_∞ sînt soluțiile de regim staționar ale ecuațiilor Maxwell-Bloch, se definesc variațiile

$$\delta P(z, t) = P(z, t) - P_\infty(z) \tag{7.140}$$

$$\delta D(z, t) = D(z, t) - D_\infty(z) \tag{7.141}$$

$$\delta E(z, t) = E(z, t) - E_\infty(z) \tag{7.142}$$

unde $|\delta E(z, t)| \ll E_\infty(z)$ etc.

Prin introducerea soluțiilor $E(z,t)$, $P(z, t)$ și $D(z,t)$ avînd forma de mai sus în ecuațiile Maxwell-Bloch și neglijarea termenilor de ordinul al doilea se obține sistemul

$$\delta \dot{P}(t) = -\frac{\delta P}{T_2} + \frac{d}{\hbar} E_\infty \delta D + \frac{d}{\hbar} D_\infty \delta E \tag{7.143}$$

$$\delta \dot{D}(t) = -\frac{d}{\hbar} E_\infty \delta P - \frac{d}{\hbar} P_\infty \delta E - \frac{\delta D}{T_1} \tag{7.144}$$

$$\delta \dot{E}(t) = -g\delta P - K\delta E \tag{7.145}$$

a cărui soluție are forma

$$\delta P(t) = \exp\,(\lambda t) \cdot \delta P(0) \tag{7.146}$$

$$\delta D(t) = \exp\,(\lambda t) \cdot \delta D(0) \tag{7.147}$$

$$\delta E(t) = \exp\,(\lambda t) \cdot \delta E(0) \tag{7.148}$$

unde $\delta P(0)$, $\delta D(0)$ și $\delta E(0)$ sînt perturbațiile inițiale. Condiția de stabilitate $\mathrm{Re}\ \lambda < 0$ este satisfăcută pentru regiunile caracteristicii pentru care $dy/dx > 0$, regiunea cu $dy/dx < 0$ fiind instabilă.

ii) Fenomenele dependente de timp ale bistabilității optice au fost studiate pentru prima dată de către Bonifacio și Meystre în 1978 și Abraham în 1979 [235]. Astfel de fenomene sînt importante în utilizarea dispozitibelor optice bistabile ca elemente de circuit. Prezintă interes două

cazuri particulare : 1) T_1, $T_2 \gg \tau_c$ (variabilele de cîmp pot fi eliminate adiabatic). În acest caz, care caracterizează cavitățile cu Q scăzut, în sistem apar oscilații la saltul pe ramura superioară ; 2) T_1, $T_2 \ll \tau_c$ (variabilele atomice pot fi eliminate adiabatic). În acest caz, care caracterizează sistemele cu Q ridicat, răspunsul este de tip exponențial (fig. 7.14). Se constată că oscilațiile apar atît pentru bistabilitatea absorbtivă, cît și pentru cea dispersivă, precum și în cazul lărgirii neomogene.

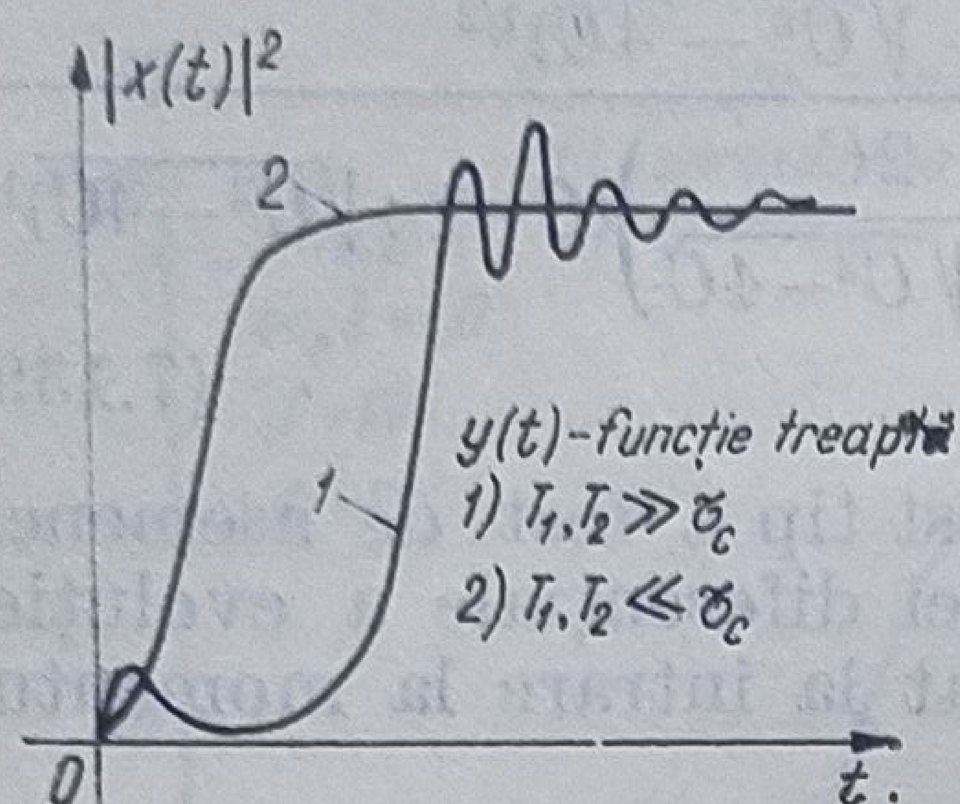


Fig. 7.14

Un algoritm general de studiu a problemei dependente de timp în bistabilitatea optică este prezentat în lucrarea [352]. Ecuațiile Maxwell-Bloch dependente de timp sînt integrate prin aproximații succesive. Liniarizarea acestor ecuații se face prin înlocuirea părților neliniare cu expresiile obținute în aproximația anterioară. Prima etapă a algoritmului corespunde aproximației adiabatice în ipotezele cîmpului mediu. Soluțiile obținute sînt generale pentru bistabilitatea absorbtiv-dispersivă și iau în considerare parametri importanți cum sînt : coeficientul de absorbție nerezonantă, dezacordul cavității, valoarea finită a transmisivității oglinzilor etc.

iii) Analiza caracteristicilor de bistabilitate evidențiază posibilitatea funcționării în regim auto-pulsat a dispozitivelor optice bistabile, efect important în utilizarea acestora pentru conversia $DC-AC$ a luminii. Regimul „auto-pulsat" a fost prezis în anul 1980 de către Lugiato pentru cavitățile în inel dispersive și în tot anul 1980 de către Casagrande pentru cavitățile Fabry-Pérot. Se constată că pentru un punct de funcționare instabil, sistemul, fie trece într-o stare staționară stabilă, fie evoluează periodic, în regim auto-pulsat. Se poate arăta că este posibilă și o a treia situație — *de haos* — în care secvența de impulsuri este complet neregulată.

Într-adevăr, dacă ramura inferioară a caracteristicii din figura 7.8 este stabilă, iar zona intermediară este instabilă, pe ramura superioară apar noi tipuri de instabilități. Astfel, după o zonă stabilă, urmează o bifurcație și sistemul începe să oscileze cu perioada $2t_R$.

Prin creșterea lui (E_I) apar noi bifurcații, sistemul oscilează pe frecvența dublă și fenomenul se repetă pînă cînd E_I depășește o valoare critică după care apare starea de haos.

Dacă regimul autopulsat se obține în ipotezele $\alpha L \ll 1$, $T \ll 1$ (MF), $\Delta = 0$, fără ca variabilele să fie eliminate adiabatic. Pentru $\alpha L \gg 1$ și $\tilde{\Delta} \gg 1$, este evidențiată comportarea multistabilă a sistemului (Ikeda, 1979), descrisă de ecuațiile

$$E_+(0, t) = (1 - R)^{1/2} E_I(t) + RE_+(0, t - t_R) f_1(D(t)) \quad (7.149)$$

$$\frac{dD(t)}{dt} = -\gamma_{||} D(t)] - |E_+(0, t - t_R)|^2 f_2(D(t)) \quad (7.150)$$

unde f_1 și f_2 sînt funcții de $D(t)$, iar $t_R = 2(L + l)/c$ este timpul unui parcurs prin cavitate, polarizarea P_+ fiind eliminată adiabatic $(T_1 \gg T_2)$.

În regim staţionar din ecuaţiile (7.149) şi (7.150) rezultă o caracteristică multistabilă (fig. 7.15).

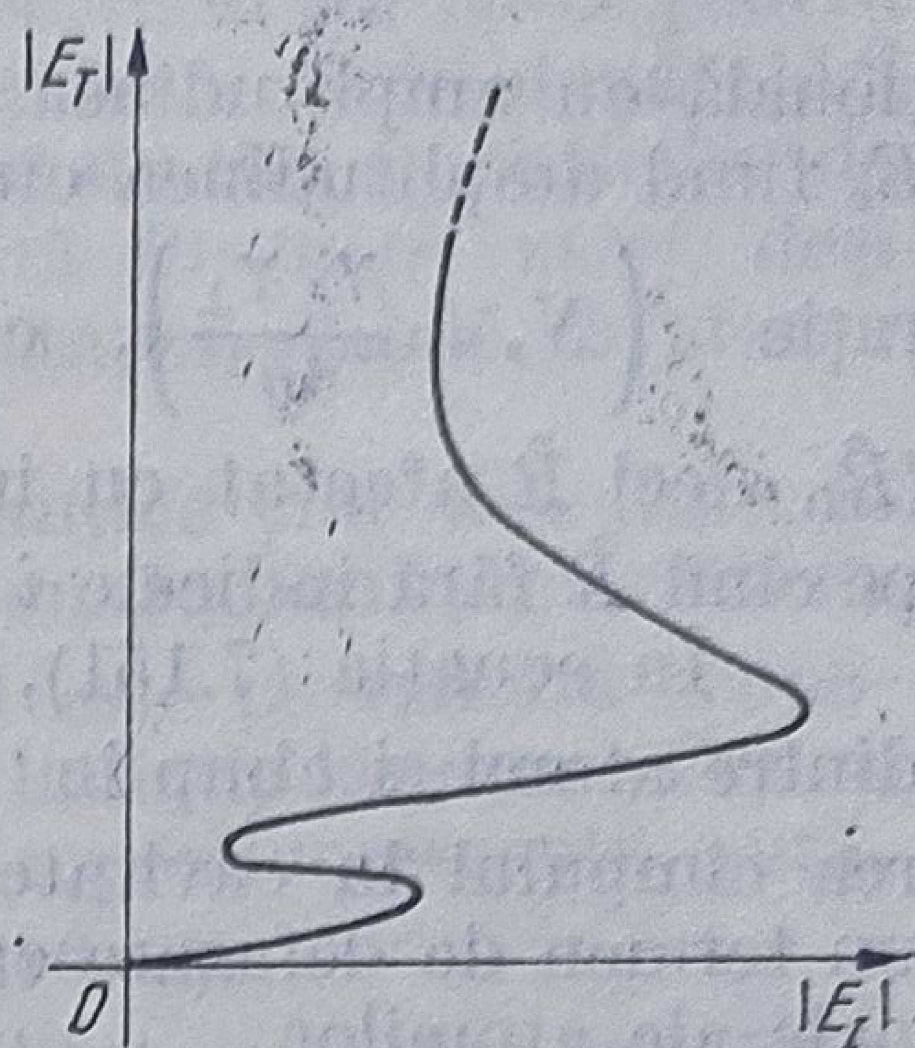


Fig. 7.15

7.7.4. Teoria cuantică a bistabilităţii optice

În cazul bistabilităţii optice, teoria semicuantică este limitată de dificultăţile privind luarea în considerare a fluctuaţiilor sistemului şi de imposibilitatea de a face distincţie între stările stabilă şi metastabilă ale sistemului în regiunea de bistabilitate.

Studiul spectrului luminii transmise şi al statisticilor de fotoni, precum şi necesitatea corelării bistabilităţii optice cu tranziţiile de fază, fac necesară teoria cuantică ale cărei aspecte esenţiale sînt evidenţiate în continuare. Întrucît abordarea cuantică generală este dificilă se preferă modelul *ecuaţiei master*, care este un model al statisticii cuantice, ecuaţia master fiind o ecuaţie pentru operatorul densitate.

Funcţie de condiţiile experimentale apar două situaţii limită : a) $T_1, T_2 > \tau_c$ şi b) $T_1, T_2 < \tau_c$, conform cărora pot fi eliminate adiabatic variabilele de cîmp sau cele atomice astfel că şi forma ecuaţiei master utilizabilă va fi diferită.

În prima etapă se scrie ecuaţia sub forma generală pentru operatorul statistic $\hat{W}(t)$ sau $\hat{\rho}_{AC}(t)$ al sistemului cuplat atomi-cîmp de radiaţie intern, în descrierea de interacţie, sub forma

$$\frac{d\hat{W}}{dt} = -iL_{AC}\hat{W} + \Lambda_C\hat{W} + \Lambda_A\hat{W} \tag{7.151}$$

care reprezintă de fapt modelul laserului în inel, monomod, cu semnal injectat. În ecuaţia de mai sus

$$\hat{L}_{AC}\hat{W} = \frac{1}{\hbar}[\hat{H}_{AC}, \hat{W}] \tag{7.152}$$

$$\tilde{H}_{AC} = i\bar{g}(\hat{A}^+\hat{R}^- - \hat{A}\hat{R}^+) \tag{7.153}$$

$$\hat{\Lambda}_C\hat{W} = K\{[(\hat{A} - \hat{\alpha}), \hat{W}(\hat{A} - \hat{\alpha})^+] + [(\hat{A} - \hat{\alpha})\hat{W}, (\hat{A} - \hat{\alpha})^+]\} \tag{7.154}$$

$$\hat{\Lambda}_A\hat{W} = \sum_{i=1}^{N}\left\{\frac{1}{2}\gamma_{\parallel}([\hat{R}_i^-, \hat{W}\hat{R}_i^+] + [\hat{R}_i^-\hat{W}, \hat{R}_i^+]) + \left(\gamma_{\perp} - \frac{1}{2}\gamma_{\parallel}\right)([\hat{R}_{3,i}, \hat{W}\hat{R}_{3,i}] + [\hat{R}_{3,i}\hat{W}, \hat{R}_{3,i}])\right\}. \tag{7.155}$$

S-au utilizat notaţiile : $\bar{g} = \left(\frac{2\hbar\omega_0}{V}\right)^{1/2} d$ pentru constanta de cuplaj în aproximaţia de dipol ; $K = cT/2L$ pentru constanta de amortizare a cavităţii ; $\alpha = (V/8\pi\hbar\omega_0)^{1/2}E_I\sqrt{T}$ este o mărime reală pozitivă propor-

țională cu amplitudinea cîmpului incident; $A = (V/8\pi\hbar\omega_0)^{1/2}E_c = \sqrt{N_s}x_v$, E_c fiind amplitudinea cîmpului intern, iar N_s numărul de fotoni la saturație $\left(N_s = \frac{\gamma_{\|}\gamma_{\perp}}{4\bar{g}^2}\right)$, celelalte mărimi avînd semnificații cunoscute ($\hat{R}_i$, deci $\hat{R}$ afectat cu indice, se referă la atomul i și se mai notează $\hat{r}_i$, pe cînd $\hat{R}$ fără indicele i este operatorul de dipol colectiv notat și cu $\hat{\mathcal{R}}$.

În ecuația (7.151), termenul care conține pe $\hat{L}_{AC}$ descrie interacția dintre atomi și cîmp în aproximația undei rotitoare, $\hat{\Lambda}_C$ descrie propagarea cîmpului în cavitate cu considerarea cîmpului incident, iar $\hat{\Lambda}_A$ este un termen de defazare care apare datorită relaxărilor radiative și colizionale ale atomilor.

(Semnificația operatorului $\hat{W}_C$ rezultă în cazul particular al absenței atomilor din rezolvarea ecuației $\hat{\Lambda}_C\hat{W}_C = 0$ a cărei soluție este starea coerentă $W_C = |\alpha\rangle\langle\alpha|$).

Se constată că în aproximația semicuantică, pe baza definițiilor de tipul

$$\langle\hat{R}^-(t)\rangle = \mathrm{Urm}[\hat{R}^-\hat{W}(t)] \qquad (7.156)$$

ecuația *master* se reduce la ecuațiile pentru valorile medii ale operatorilor $\hat{R}^-$, $\hat{R}_3$ și $\hat{A}$ scrise sub forma

$$\langle\dot{\hat{R}}^-\rangle = 2\bar{g}\langle\hat{A}\hat{R}_3\rangle - \gamma_\perp\langle\hat{R}^-\rangle \qquad (7.157)$$

$$\langle\dot{\hat{R}}_3\rangle = -\bar{g}(\langle\hat{A}\hat{R}^+\rangle + \langle\hat{A}^+\hat{R}^-\rangle) - \gamma_{\|}\left(\langle\hat{R}_3\rangle + \frac{N}{2}\right) \qquad (7.158)$$

$$\langle\dot{\hat{A}}\rangle = \bar{g}\langle\hat{R}^-\rangle - K(\langle\hat{A}\rangle - \alpha) \qquad (7.159)$$

echivalente, prin factorizarea valorii medii a produsului ca produsul valorilor medii, cu modelul semicuantic în aproximația cîmpului mediu.

Spectrul radiației transmise se obține prin evaluarea transformatei Fourier $S(\omega)$ a funcției de corelație pentru regim staționar $\langle\hat{A}^+(t)\hat{A}(t)\rangle_s$

$$S(\omega) = \frac{1}{\pi} Re\left\{\int_0^\infty dt \exp[-i(\omega - \omega_0)t]\langle\hat{A}^+(t)\hat{A}\rangle_{st}\right\} \qquad (7.160)$$

adică prin calculul fluctuațiilor $\delta\hat{A}(t)$ ale sistemului în jurul stării staționare

$$\delta\hat{A}(t) = \hat{A}(t) - \hat{A}_{st}. \qquad (7.161)$$

În expresia spectrului $S(\omega)$ pot fi evidențiate *o parte coerentă* $S_c(\omega)$, care are aceeași frecvență cu aceea a cîmpului incident și este proporțională cu intensitatea cîmpului transmis x^2 pentru un cîmp incident dat

$$S_c = N_s x^2 \delta(\omega - \omega_0). \qquad (7.161)$$

și *o parte incoerentă* $S_{inc}(\omega)$

$$S_{inc}(\omega) = \frac{1}{\pi} \mathrm{Re}\left\{\int_0^\infty dt \exp[-i(\omega - \omega_0)t]\langle\delta A^+(t)\delta A\rangle_{st}\right\} \qquad (7.162)$$

care este determinată de fluctuațiile cîmpului în jurul valorii staționare, fiind astfel de natură cuantică.

Ca și analiza liniară a stabilității, studiul spectrului s-a făcut pentru cazul *micilor fluctuații* în jurul fiecărei stări staționare, cele două stări (stabilă și metastabilă) fiind astfel echivalente. Din studiul statisticilor de fotoni rezultă că atunci cînd în sistem se dezvoltă *fluctuații mari*, deși probabilitatea lor este scăzută, acesta trece din starea stabilă în starea metastabilă.

Unele concluzii privind aceste rezultate cuantice sînt discutate în continuare, în cele două cazuri limită ale cavităților cu Q scăzut și cu ridicat.

a) *Cazul* $T_1, T_2 \gg \tau_c$. Atunci cînd sistemul este pe ramura cooperativă spectrul se prezintă sub forma unei singure linii de lărgime $\gamma C(\gamma = \gamma_{||} = 2\gamma_{\perp})$ egală cu lărgimea liniei γ_R pentru superfluorescența pură, adică linia este *lărgită cooperativ* ($C \sim N$) (fig. 10.16, a).

Pe măsură ce se merge spre pragul de bistabilitate spectrul se îngustează (b). Atunci cînd are loc tranziția pe ramura „cu un atom'' spectrul devine triplet (c) ca urmare a manifestării efectului Stark dinamic. (Pentru $C \gg 1$, frecvența Rabi $\Omega_R \gg \gamma$, astfel încît liniile laterale sînt separate de linia centrală. La descreșterea cîmpului, înspre punctul de tranziție pe ramura cooperativă, se produce apropierea (d) benzilor laterale de linia centrală, astfel încît spectrul este format dintr-o singură linie în urma tranziției (e). Prin urmare există un ciclu histerezis al spectrului.

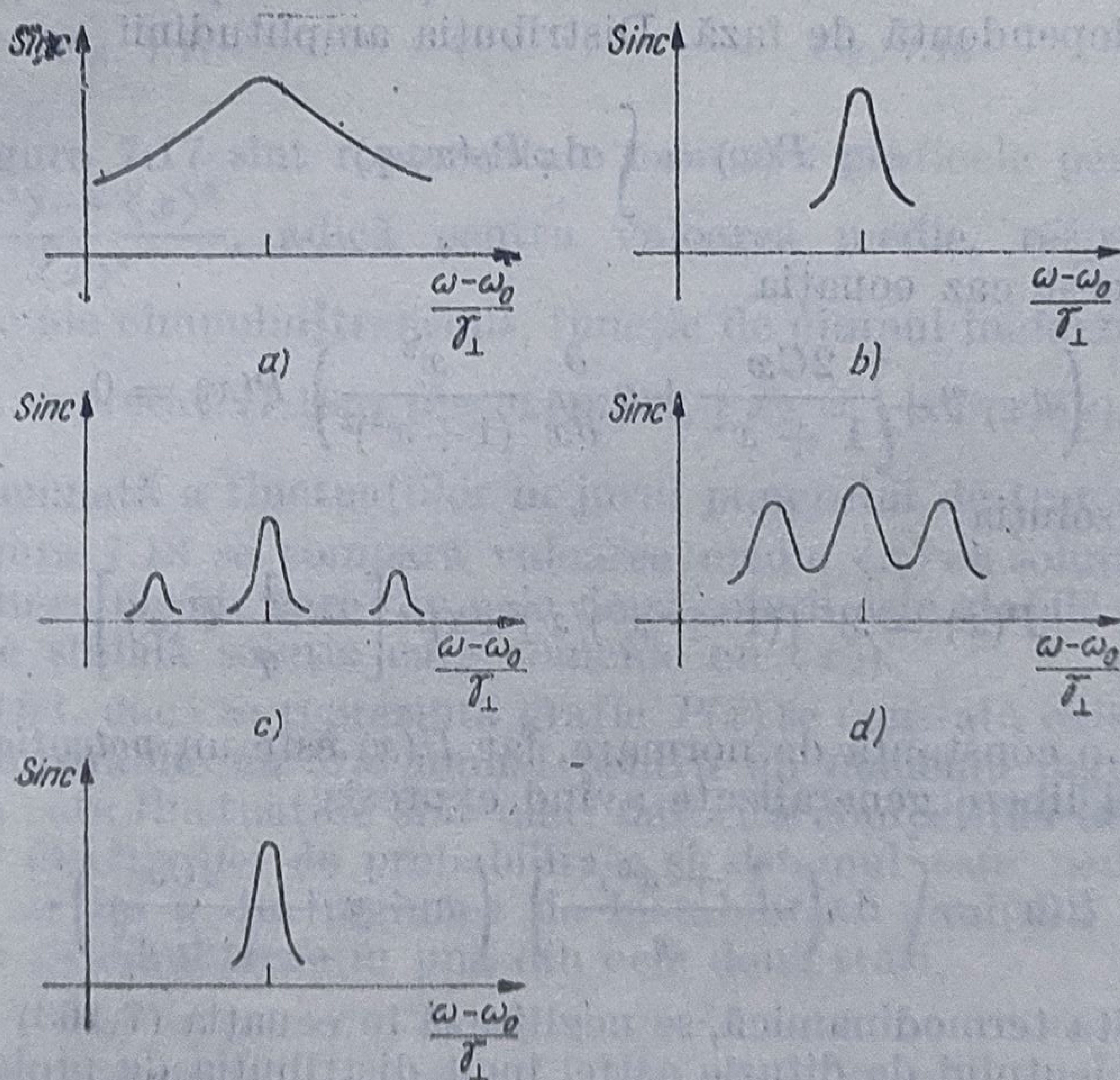


Fig. 7.16

b. *Cazul* $T_1, T_2 \ll \tau_c$. Ca și în cazul anterior, pentru cîmpuri incidente slabe, lărgimea liniei spectrale este proporțională cu N și se îngustează pe măsură ce ne apropiem de pragul de bistabilitate (îngustare cooperativă). În urma tranziției spectrul se modifică brusc, linia spectrală avînd o lărgime corespunzătoare celei a cavității goale, pentru ca la tranziția inversă să se producă îngustarea liniei.

Conform teoriei sistemelor deschise din ecuaţia master rezultă că distribuţia Glauber a cîmpului transmis $P_G(x, \varphi, t)$ verifică următoarea ecuaţie Fokker-Planck

$$\frac{\partial}{\partial_t} P_G(x, \varphi, t) = K \left[\frac{\partial}{\partial x}\left(x - y\cos\varphi + \frac{2Cx}{1+x^2} + q\frac{\partial}{\partial x}\frac{x^2}{(1+x^2)^2}\right) + \right. \tag{7.163}$$

$$\left. + \frac{\partial}{\partial \varphi}\left(\frac{y}{x}\sin\varphi + q\frac{\partial}{\partial\varphi}\frac{1}{1+x^2}\right)\right] P_G(x, \varphi, t).$$

În ecuaţia de mai sus x este o variabilă aleatoare care corespunde amplitudinii normate a cîmpului, φ este faza cîmpului iar constanta de difuzie q are espresia $q = C/2N_s$. Spre deosebire de ecuaţiile Fokker-Planck pentru laser, termenul de difuzie este în acest caz dependent de intensitate ceea ce arată că în bistabilitatea optică efectele de saturaţie sînt importante atît în mişcarea de drift cît şi în fluctuaţii. Dacă se liniarizează ecuaţia (7.163) în raport cu faza ($\cos\varphi = 1$), situaţie care corespunde descrierii semicuantice, unde $\varphi = 0$ (deşi faza fluctuează în jurul valorii nule), soluţia de regim staţionar $\left(\frac{\partial P_G}{\partial t} = 0\right)$ a ecuaţiei de mai sus va fi independentă de fază. Distribuţia amplitudinii

$$P(x) = \int d\varphi P_G(x, \varphi) \tag{7.164}$$

verifică în acest caz ecuaţia

$$\left(x - y + \frac{2Cx}{1+x^2} + q\frac{\partial}{\partial x}\frac{x^2}{(1+x^2)^2}\right) P(x) = 0 \tag{7.165}$$

care admite soluţia

$$P(x) = \mathcal{N}\,[(1 + x^2)/x]^2 \exp\left[-\frac{1}{q}U(x)\right] \tag{7.166}$$

unde $\mathcal{N}$ este o constantă de normare, iar $U(x)$ este un *potenţial* care joacă rolul energiei libere generalizate avînd expresia

$$U(x) = \int dx\left(\frac{1 + x^2)^2}{x}\right)\left(x - y + \frac{2Cx}{1+x^2}\right). \tag{7.167}$$

La limita termodinamică, se neglijează în ecuaţia (7.163) dependenţa de x a coeficientului de difuzie astfel încît distribuţia de probabilitate va fi descrisă de potenţialul

$$U_t(x) = \int dx\left(x - y + \frac{2Cx}{1+x^2}\right). \tag{7.168}$$

Din expresiile (7.167) şi (7.168) obţinute în urma integrării, rezultă conform condiţiilor $\frac{\partial U}{\partial x} = \frac{\partial U_t}{\partial x} = 0$ aceeaşi ecuaţie de stare, însă expresia netermodinamică (7.167) ia în considerare şi fluctuaţiile.

Se constată că limita termodinamică corespunde cazului $N \to \infty$ și $V \to \infty$ cu $\rho = N/V = $ ct., echivalent cu $q \to 0$.

În acest caz $P(x)$, tinde către funcția δ, poziționată în punctul corespunzător minimului absolut al lui $U(x)$ astfel încît descrierea cuantică trece în descrierea termodinamică.

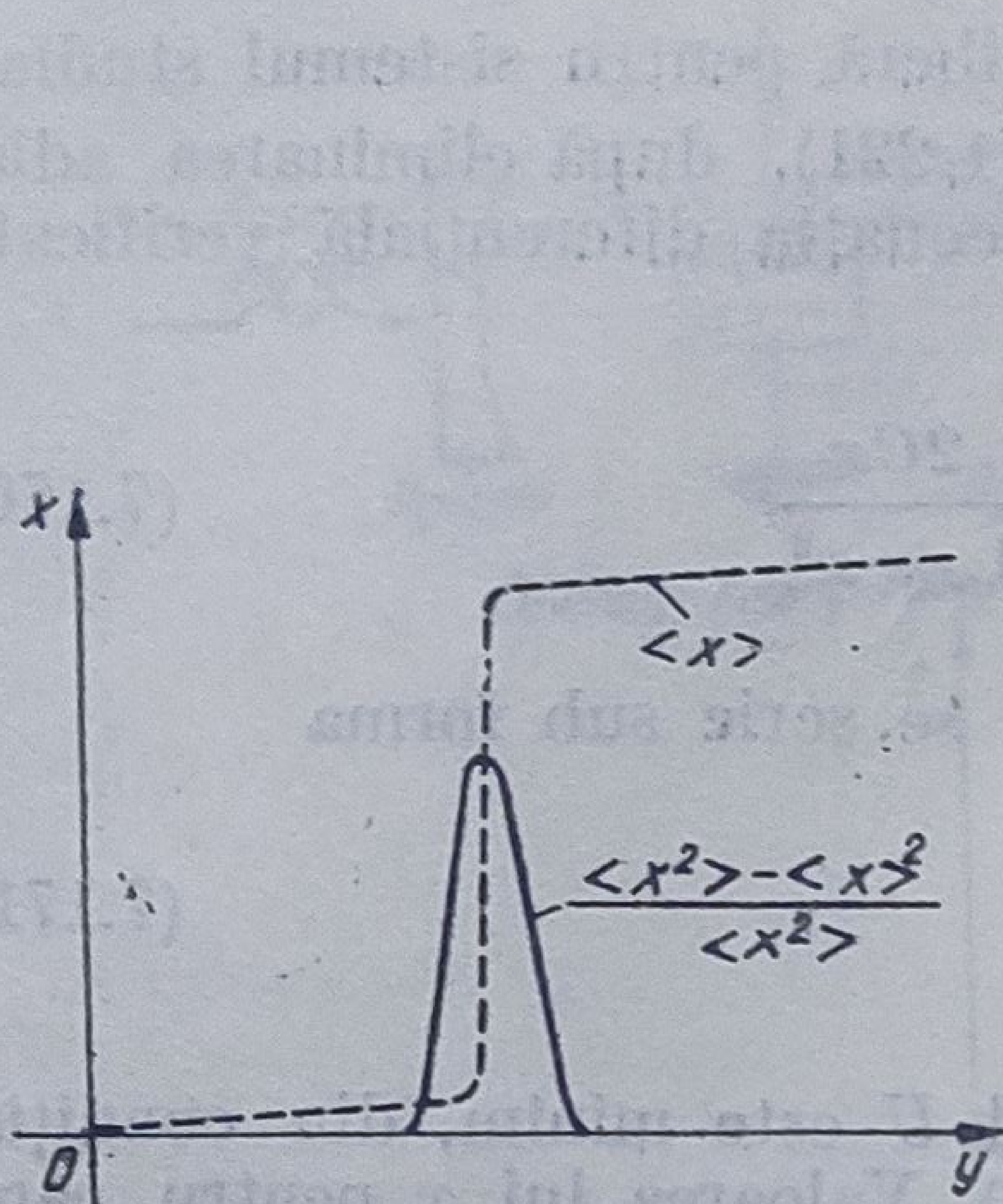


Fig. 7.17

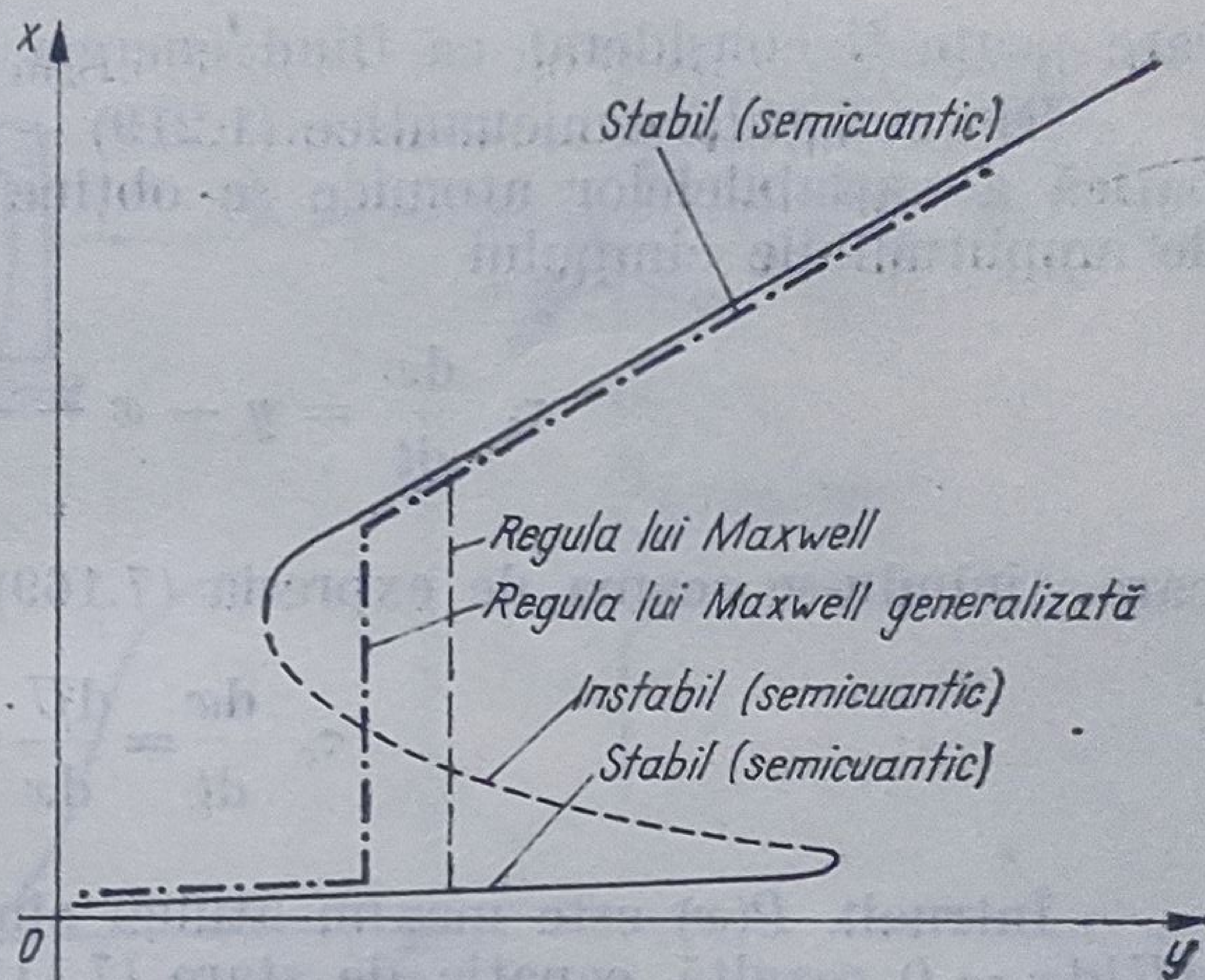


Fig. 7.18

În figura 7.17 sînt reprezentate calitativ graficele pentru mărimile $\langle x \rangle$ și $\frac{\langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2}{\langle x \rangle^2}$, adică pentru valoarea medie, respectiv fluctuațiile relative ale cîmpului transmis, funcție de cîmpul incident y, calculate cu ajutorul expresiei (7.166) (de exemplu, $\langle x \rangle = \int xP(x)\mathrm{d}x$). Se constată o creștere însemnată a fluctuațiilor în jurul punctului de tranziție.

În figura 7.18 se compară valoarea medie $\langle x \rangle$ cu soluțiile semicuantice, putîndu-se decide care din cele două soluții este stabilă și care metastabilă (este stabilă soluția care coincide cu $\langle x \rangle$).

De altfel, dacă se reprezintă grafic $P(x)$ se constată existența a două maxime comparabile ca arie numai pentru un domeniu îngust de valori ale lui y, în care fluctuațiile sînt mari datorită competiției între cele două maxime ale distribuției de probabilitate și sistemul este nedecis. Pentru alte valori ale lui y din regiunea de bistabilitate unul din maxime este dominant și sistemul trece în una din cele două stări.

7.7.5. Bistabilitatea optică ca tranziție de fază

În anul 1976, Bonifacio și Lugiato au arătat că bistabilitatea optică poate fi tratată ca o tranziție de fază de speța întîi într-un sistem care operează departe de echilibru.

Astfel, asociind semnalul de intrare y cu presiunea unui fluid și semnalul de ieșire x cu volumul, caracteristicile de bistabilitate din figura 7.11 pot fi puse în corespondență cu izotermele Van der Waals, rolul temperaturii fiind jucat de parametrul cooperativ C.

În principiu, pentru potențialul $U(x)$, introdus prin definiția (7.166), poate fi admisă expresia

$$U(x) = -yx + \frac{x^2}{2} + C\ln(1 + x^2) + \frac{y^2}{2} \tag{7.169}$$

care poate fi considerat ca fiind energia liberă pentru sistemul studiat.

Din ecuațiile semicuantice (1.219) — (1.221), după eliminarea adiabatică a variabilelelor atomice se obține ecuația diferențială verificată de amplitudinile cîmpului

$$\tau_c \frac{dx}{dt} = y - x - \frac{2Cx}{1 + x^2} \tag{7.170}$$

care, ținîndu-se seama de expresia (7.169), se scrie sub forma

$$\tau_c \frac{dx}{dt} = \frac{dU}{dx}. \tag{7.171}$$

Întrucît $P(x)$ este maxim atunci cînd U este minim, din condiția $dU/dx = 0$ rezultă ecuația de stare (7.111). Valoarea lui x pentru care $U(x)$ este minim este corelată cu *parametrul de ordine* al tranziției și se notează dcu η. Se știe că existența mai multor minime pentru $U(x)$ corespunde unor tranziții e fază de speța întîi.

Ținîndu-se seama de corelația dintre $P(x)$ și $U(x)$ rezultă că starea metastabilă corespunde unui minim relativ al lui $U(x)$ pe cînd starea stabilă corespunde minimului absolut al lui $U(x)$.

În cazul sistemelor bistabile această analiză conduce la regula lui Maxwell privind tranzițiile de fază de speța întîi. Din figura 7.18 rezultă că regula lu Maxwell pentru tranzițiile de fază de speța întîi se modifică în cazul bistabilității optice sub forma *regulii lui Maxwell generalizează*. Această comportare se datorește dependenței de intensitate a coeficientului de difuzie (pentru o valoare constantă a acestuia diferența dintre cele două reguli dispare).

7.7.6. Dispozitivele optice bistabile hibride

În paralel cu dispozitivele optice bistabile intrinseci s-a dezvoltat o gamă largă de dispozitive bistabile hibride discrete, sau integrate, realizate cu materiale electrooptice, semiconductoare, cristale lichide etc. Funcționarea bistabilă a unui astfel de dispozitiv al cărui element principal îl constituie un mediu neliniar este condiționată, după cum s-a mai arătat, de aplicarea unui semnal electric, proporțional cu semnalul optic de ieșire, pe mediul neliniar a cărui transmisie este funcție de tensiunea aplicată, prin intermediul căii de reacție. Rezultatele privind analiza teoretică a două tipuri reprezentative de astfel de dispozitive, dispozitivul bistabil cu modulator electrooptic de fază în cavitatea Fabry-Pérot (fig. 7.19) și dispozitivul de tip interferometru integrat au fost analizate în lucrările [332, 333], modelul elaborat fiind general (fig. 7.20). Caracteristica de bistabilitate a fost obținută utilizîndu-se funcțiile de transfer atît pen-

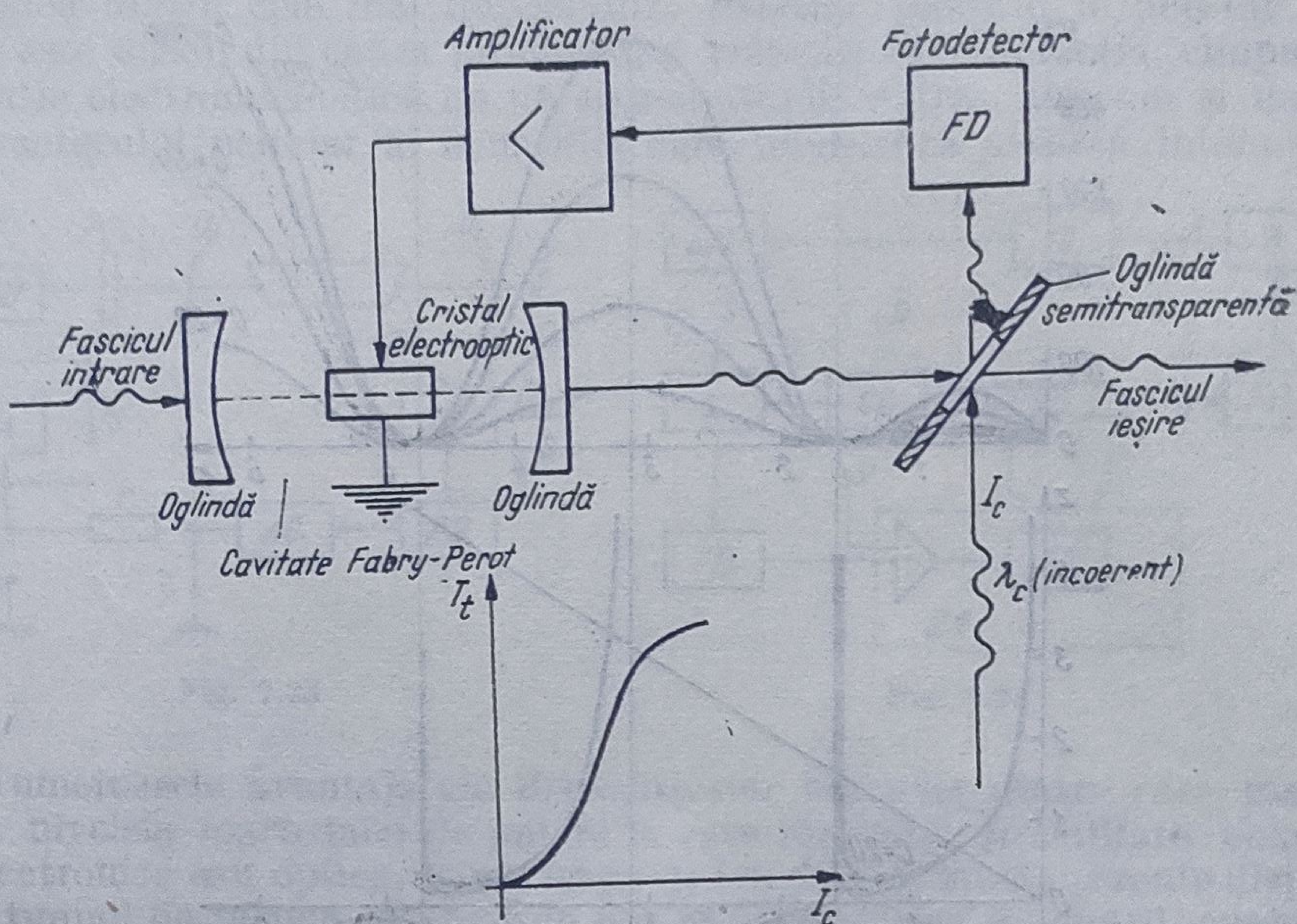


Fig. 7.19

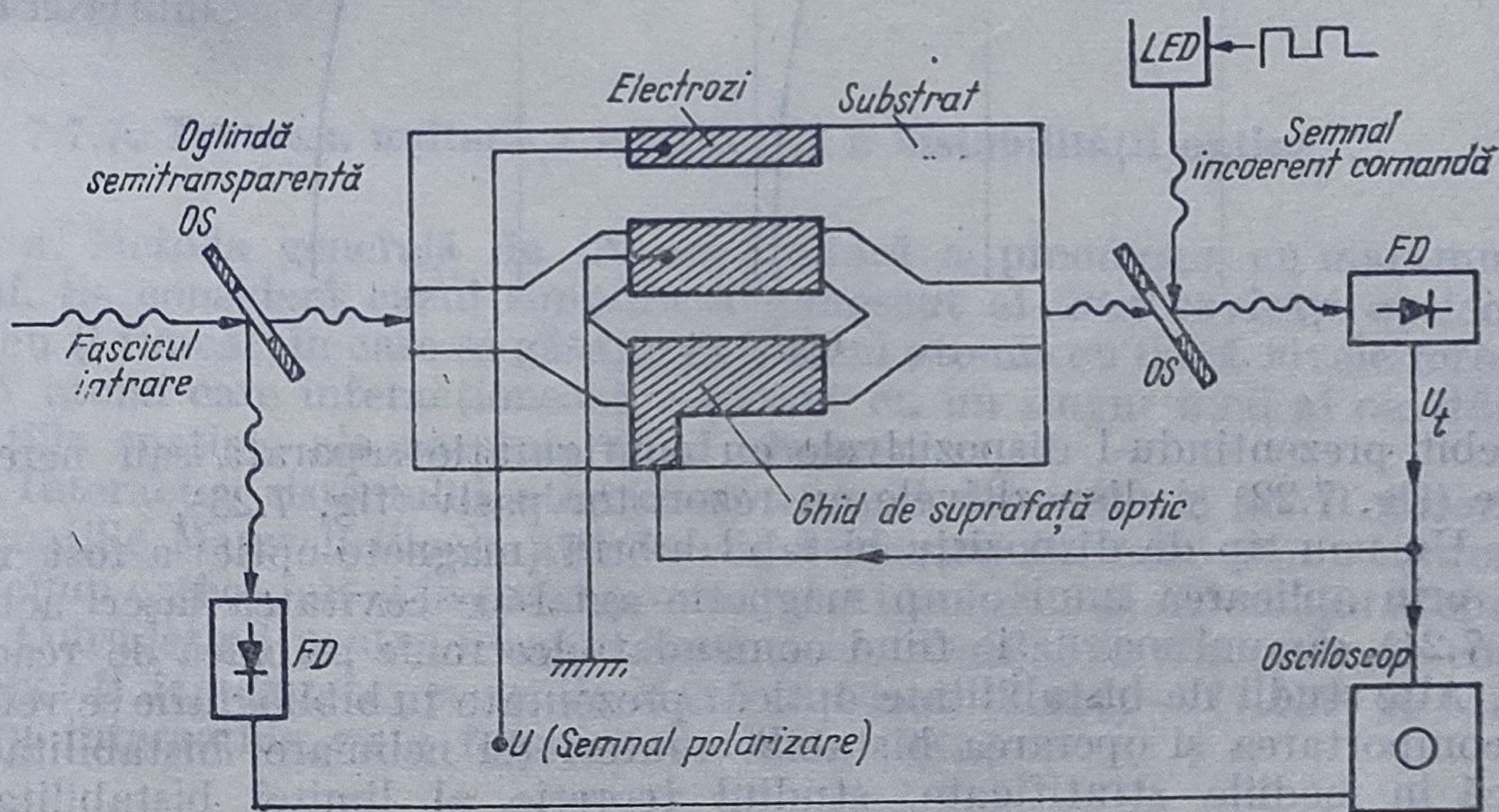


Fig. 7.20

tru dispozitivul propriu-zis cît și pentru bucla de reacție. În figura 7.21 se prezintă caracteristicile de bistabilitate și multistabilitate pentru dispozitivul cu modulator de fază în cavitatea Fabry-Pérot. S-au mai obținut : ecuațiile diferențiale pentru operarea bistabilă și multistabilă, punctele critice ale ciclului histerezis, parametrii de amplificare etc. Dispozitivele bistabile electrooptice cu mai multe tensiuni de reacție au fost analizate cu ajutorul teoremei de stabilitate Liapunov.

Rezultatele experimentale privind mai multe tipuri de dispozitive bistabile cu cristale lichide sînt discutate în lucrările [339, 340] un interes

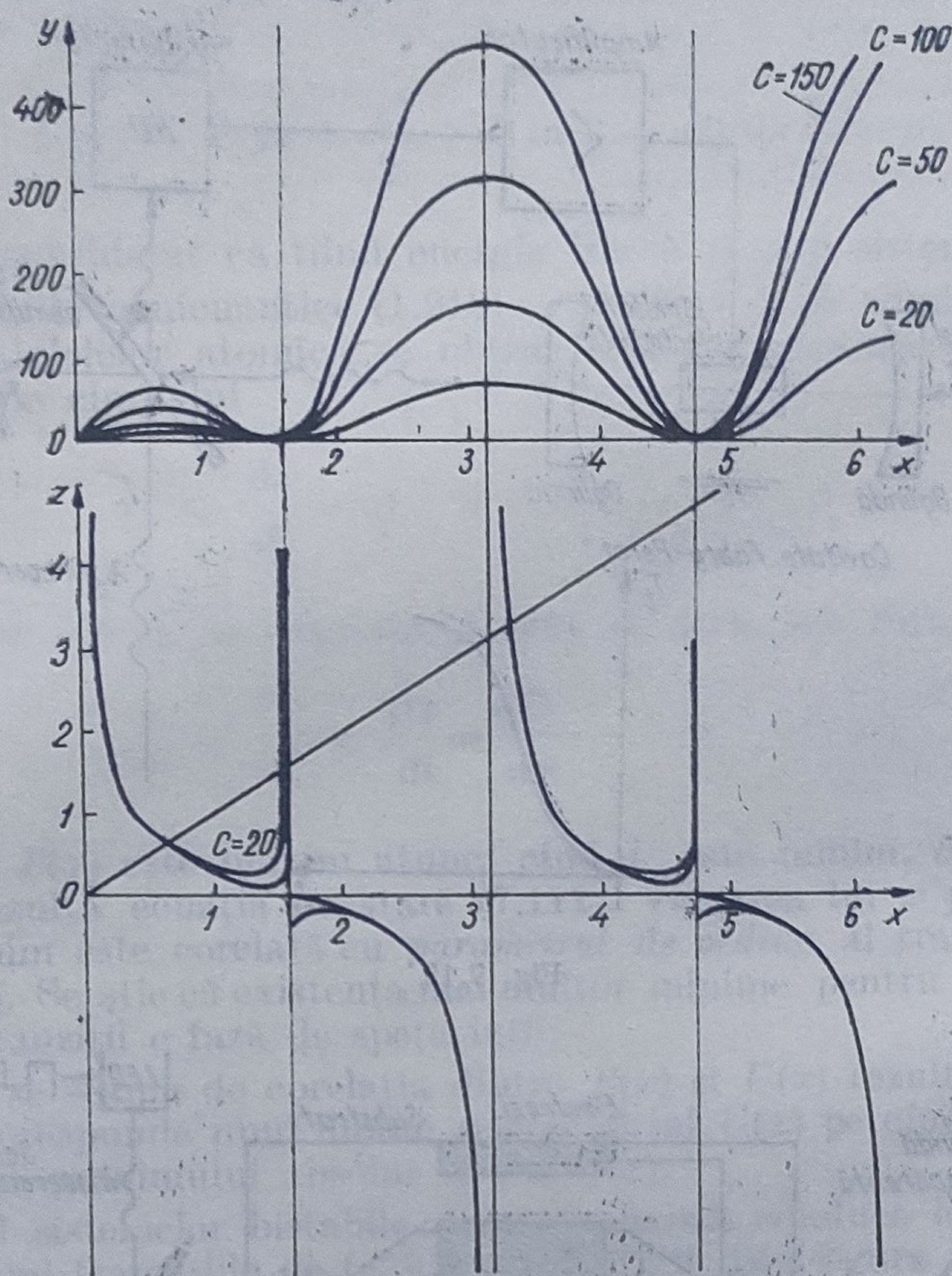


Fig. 7.21

deosebit prezentîndu-l dispozitivele cu configurație separată sau nerezonante (fig. 7.22) și dispozitivele cu rezonator pasiv (fig. 7.23).

Un nou tip de dispozitiv bistabil hibrid (magneto-optic) a fost realizat prin aplicarea unui cîmp magnetic axial pe cavitatea laser activă (fig. 7.24), cîmpul magnetic fiind comandat electronic pe calea de reacție [94]. Alte studii de bistabilitate optică, prezentate în bibliografie se referă la : comportarea și operarea bistabilă a interfeței neliniare, bistabilitatea optică în mediile stratificate, studiul teoretic al limitei bistabilitate-autofocalizare etc.

Bistabilitatea optică hibridă prezintă un interes științific și aplicativ deosebit. Se poate menționa în acest sens posibilitatea ridicării performanțelor de viteză și capacitate ale calculatoarelor optice, unde se preconizează utilizarea dispozitivelor optice bistabile ca elemente de memorie rapidă, pînă la limitele admise de principiile fundamentale ale fizicii. De asemenea, în studiile de bistabilitate pot fi analizate fenomenele de autoreglare și haos ale căror principii generale permit mărirea gradului de ordine a unui sistem fizic sub acțiunea unui flux de energie, ceea ce poate avea implicații

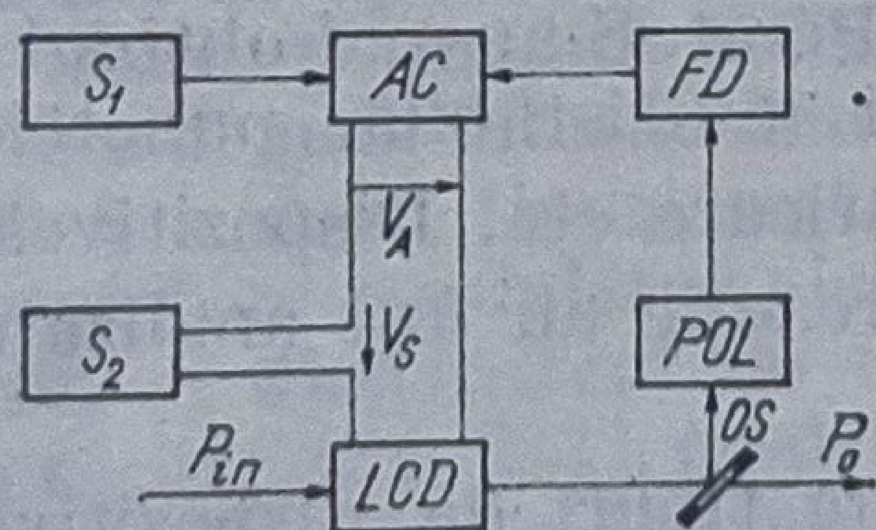


Fig. 7.22

tehnologice dintre cele mai importante. Studiul teoretic al acestor fenomene este dificil din cauza problemelor ridicate de interacția cîmpului de radiație electromagnetică cu un sistem atomic extins, precum și datorită caracterului neliniar al ecuațiilor care modelează această interacție.

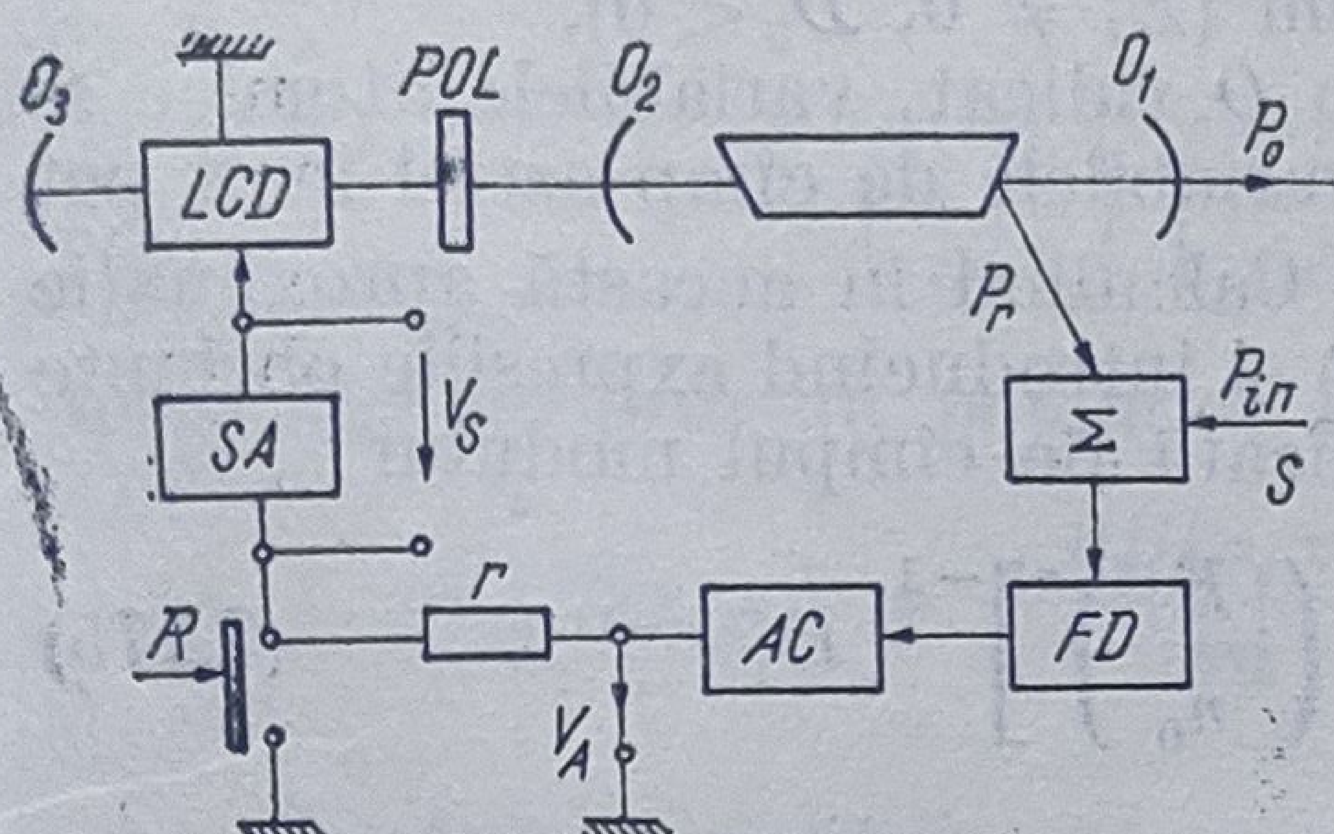


Fig. 7.23

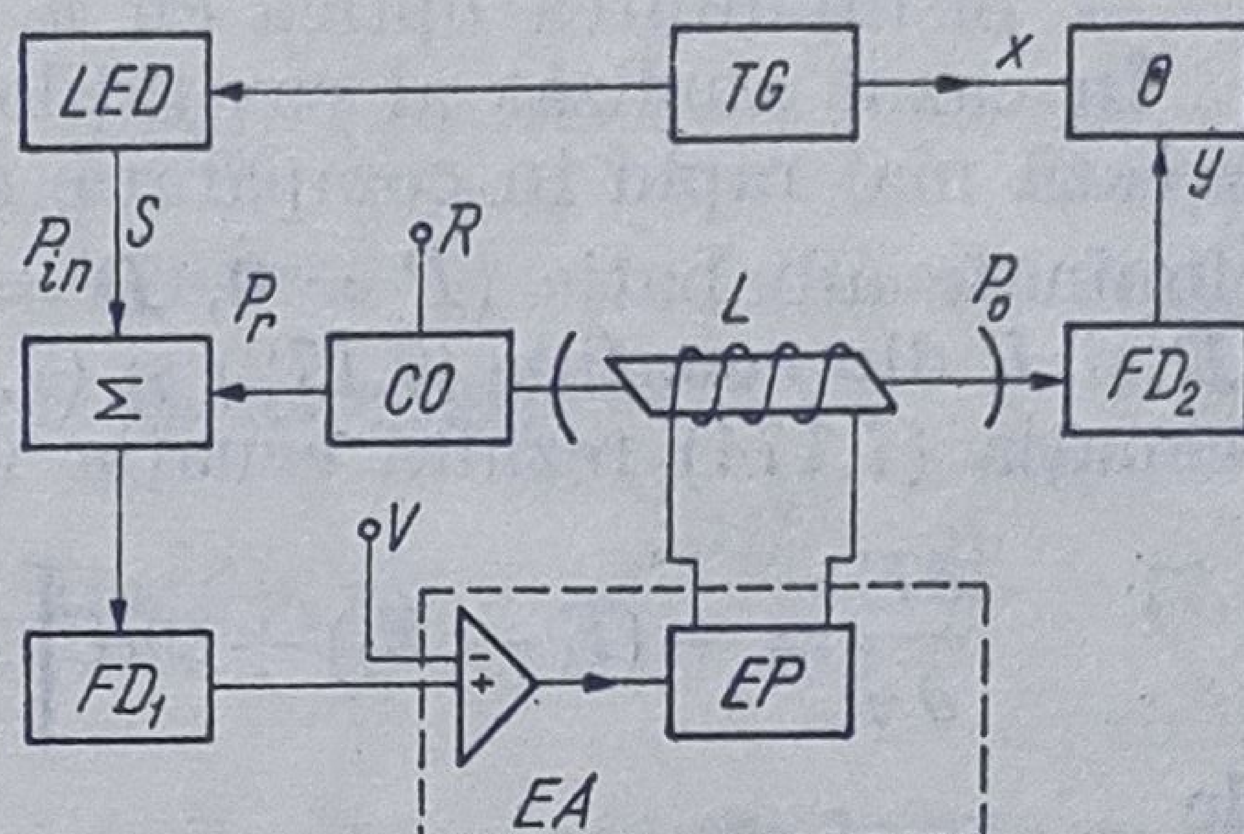


Fig. 7.24

Numeroasele avantaje ale dispozitivelor bistabile dintre care menționăm nivelele foarte mici de putere la care lucrează, posibilitate comutării electronice sau optice, gama largă de lungimi de undă coerente disponibilă, timpul de răspuns extrem de bun și posibilitatea integrării, evidențiază implicațiile inginerești ale acestui „tranzistor optic", al cărui impact tehnologic poate fi comparat cu cel al tranzistorului din electronică și cu cel al laserului.

7.7.7. Tratarea unitară a laserilor și a bistabilității optice

a. Metoda generală de tratare unitară a proceselor cu mai mulți fotoni. Se consideră cazul simplificat cunoscut al unei cavități optice în inel, cu Q ridicat, în care se găsește un sistem atomic cu două nivele format din N atomi care interacționează rezonant cu un singur mod al cavității, variațiile spațiale ale acestuia fiind absente.

Interacția sistemului atomic cu cîmpul de radiație va fi descrisă de ecuațiile Maxwell-Bloch, atît în cazul pompajului coerent, cu ajutorul unui cîmp extern, cît și în cazul pompajului incoerent al sistemului atomic.

Considerînd pentru început fluctuațiile neglijabile (funcțiile de corelație pot fi factorizate) ecuațiile Maxwell-Bloch (7.157) — (7.159) se scriu pentru interacțiile cu n fotoni sub forma [381]

$$\dot{P} = -\gamma_\perp P + 2gE^n D \tag{7.172}$$

$$\dot{D} = -\gamma_{\parallel}(D - D_0) - g[(E^*)^n P + E^n P^*] \tag{7.173}$$

$$\dot{E} = -K(E - E_I) + ngP(E^*)^{n-1} \tag{7.174}$$

În ecuațiile de mai sus, P corespunde operatorului polarizare atomică totală, D operatorului inversie atomică totală, iar E operatorului cîmpului cavității, $E_I = \mathcal{E}/K$ este o mărime proporțională cu amplitudinea cîmpului incident $\mathcal{E}$, g este un coeficient de cuplaj corespunzător elementelor de matrice pentru tranzițiile multifotonice (cu n fotoni), D_0 este inversia datorită pompajului incoerent al atomilor ($D_0 = N/2$ pentru inversie totală), iar K este rata de amortizare pentru cîmpul cavității, $\gamma_{\parallel}$ și $\gamma_\perp$ avînd sem-

nificaţii cunoscute. Sistemul de ecuaţii (7.172) — (7.174) este general pentru descrierea următoarelor interacţii :

— laserul cu n fotoni ($E_I = 0$, $D_0 > 0$);
— laserul cu n fotoni cu semnal injectat ($E_I \neq 0$, $D_0 > 0$);
— bistabilitatea optică cu n fotoni ($E_I \neq 0$, $D_0 < 0$).

În cazul analizat al cavităţilor cu Q ridicat, variabilele atomice se relaxează mai rapid în comparaţie cu variabilele de cîmp astfel încît pot fi eliminate adiabatic ($\dot{P} = 0$, $\dot{D} = 0$). Calculînd în această aproximaţie pe D şi P din ecuaţiile (7.172) şi (7.173) şi introducînd expresiile obţinute în ecuaţia (7.174) rezultă ecuaţia verificată de cîmpul modului

$$\frac{\partial E}{\partial \tau} = -(E - E_I) + 2nC\left[1 + \left(\frac{|E|^2}{n_0}\right)^n\right]^{-1} |E|^{2(n-1)} E \qquad (7.175)$$

unde

$$n_0 = \left(\frac{\gamma_{\parallel}\gamma_{\perp}}{4g^2}\right)^{1/n}, \quad \tau = Kt, \text{ iar } C = \frac{g^2(-D_0)}{K\gamma_{\perp}}. \qquad (7.176)$$

Dacă în ecuaţia (7.175) se introduc notaţiile

$$x = \left(\frac{4g^2}{\gamma_{\parallel}\gamma_{\perp}}\right)^{1/2n} E,\ y = \left(\frac{4g^2}{\gamma_{\parallel}\gamma_{\perp}}\right)^{1/2n} E_I \text{ şi } C_n = 2nC(n_0)^{n-1}, \qquad (7.177)$$

pentru regim staţionar $\left(\frac{\partial E}{\partial \tau} = 0\right)$ se obţine caracteristica generală

$$y = x\left[1 + \frac{C_n|x|^{2(n-1)}}{1 + |x|^{2n}}\right] \qquad (7.178)$$

deosebit de utilă pentru analiza cazurilor specificate mai sus.

Pentru studiul stabilităţii soluţiilir ecuaţiei (7.178) se foloseşte metoda analizei liniare care se aplică ecuaţiei (7.175) scrisă sub forma

$$\dot{E} = f(E, E^*) \qquad (7.179)$$

sau

$$\dot{E} = KE_I - Eg(I) \qquad (7.180)$$

unde $I = E^2$ (g este o funcţie reală).

Rezultă condiţiile de stabilitate sub forma

$$\frac{\partial \mathrm{Re}(f)}{\partial u} + \frac{\partial \mathrm{Im}(f)}{\partial v} < 0 \qquad (7.181)$$

$$\frac{\partial \mathrm{Re}(f)}{\partial u}\,\frac{\partial \mathrm{Im}(f)}{\partial v} - \frac{\partial \mathrm{Re} f}{\partial v}\,\frac{\partial \mathrm{Im} f}{\partial u} > 0 \qquad (7.182)$$

unde $u = \mathrm{Re}(E)$ şi $v = \mathrm{Im}(E)$, sau echivalent

$$g(I) + I\frac{\partial g(I)}{\partial I} > 0 \qquad (7.183)$$

$$g(I)\left(g(I) + 2I\frac{\partial g(I)}{\partial I)}\right) > 0 \qquad (7.184)$$

$g(I)$ corespunzînd valorii staţionare a lui I.

Condițiile de stabilitate (7.181) și (7.182) se mai scriu astfel

$$\frac{\partial^2 U}{\partial u^2} + \frac{\partial^2 U}{\partial v^2} > 0 \tag{7.185}$$

$$\left(\frac{\partial^2 U}{\partial u^2}\right)\left(\frac{\partial^2 U}{\partial v^2}\right) - \left(\frac{\partial^2 U}{\partial u \partial v}\right)^2 > 0 \tag{7.186}$$

unde $U(u, v)$ este un potențial definit de ecuațiile

$$\mathrm{Re}\,\{f(u, v)\} = -\frac{\partial U(u, v)}{\partial u}, \quad \mathrm{Im}\{f(u, v)\} = -\frac{\partial U(u, v)}{\partial v}. \tag{7.187}$$

Conform condițiilor (7.185) și (7.186) sînt stabile soluțiile ecuației (7.178) care corespund minimului local al lui $U(u, v)$.

În modelul semicuantic de mai sus fluctuațiile pot fi luate în considerare fenomenologic, adăugînd ecuației de mișcare (7.175) o forță fluctuantă δ — corelată, $\xi(t)$, astfel încît

$$\langle \xi(t') \; \xi^*(t) \rangle = \Lambda \delta(t - t') \tag{7.188}$$

$$\langle \xi(t) \; \xi(t') \rangle = 0. \tag{7.189}$$

Ecuația Fokker-Planck corespunzătoare problemei studiate se scrie ținînd seama de ecuația (7.175) sub forma

$$\frac{\partial P(E, E^*, \tau)}{\partial \tau} = -\frac{\partial}{\partial E}\left\{-(E - E_I) - 2nC\left[1 + \left(\frac{|E|^2}{n_0}\right)^n\right]^{-1} |E|^{2(n-1)})E\right\}P -$$
$$-\frac{\partial}{\partial E^*}\left\{-(E^* - E_I^*) - 2nC\left[1 + \left(\frac{|E|^2}{n_0}\right)^n\right]^{-1} |E|^{2(n-1)} E\right\} P + 2\bar{n}\frac{\partial^2 P}{\partial E \partial E^*} \tag{7.190}$$

unde $\bar{n} = \Lambda/2K$ reprezintă zgomotul termic corelat cu emisia spontană și cu fluctuațiile cîmpului incident. (Metoda ecuației Fokker-Planck (7.190) este valabilă în cazul în care zgomotul termic de mai sus este dominant în raport cu zgomotul pur cuantic. În caz contrar se utilizează ecuația Fokker-Planc cuantică).

Ecuația (7.190) admite pentru regim staționar o soluție de forma

$$P(E, E^*) = \mathcal{N} \mathrm{e}^{-U(E, E^*)} \tag{7.191}$$

unde potențialul $U(E, E^*)$ avînd expresia

$$U(E, E^*) = \frac{1}{\bar{n}}\left(|E|^2 - E_I^* E - E_I E^*\right) \tag{7.192}$$
$$- H \ln\left[1 + \left(\frac{|E|^2}{n_0}\right)^n\right]$$

verifică condițiile (7.185) și (7.186), iar $H = \frac{\gamma_{\parallel} D_0}{\Lambda}$, $\mathcal{N}$ fiind o constantă de normare.

b) Laserul (semnalul injectat absent). *Tranziţii cu un foton*. Dacă în ecuaţia (7.175) se consideră $n = 1$, $E_I = 0$ şi $D_0 > 0$, şi se pune condiţia de regim staţionar se obţine ecuaţia

$$x\left(1 - \frac{C_1}{1 + |x|^2}\right) = 0 \tag{7.193}$$

în concordanţă cu ecuaţia generală (7.178) (se redefineşte C_1 pentru a fi pozitiv $C_1 = 2g^2 D_0 / K\gamma_\perp$).

Pentru $x = re^{i\theta}$, se obţin soluţiile : $r = 0$ pentru $C_1 > 0$ şi $r = \sqrt{C_1 - 1}$ pentru $C_1 > 1$, θ fiind arbitrar.

Din condiţiile de stabilitate (7.183) şi (7.184) scrise pentru $I = r^2$ sub forma

$$I^2 + 2I + 1 - C_1 > 0 \tag{7.194}$$

$$(I + 1 - C)\,[I^2 + I(C_1 + 2) + 1 - C_1] > 0 \tag{7.195}$$

rezultă că soluţia $r = 0$ este stabilă numai pentru $C_1 < 1$ astfel încît singura soluţie stabilă este $I = C_1 - 1$ pentru $C_1 > 1$, pragul de operare al laserului corespunzînd lui $C_1 = 1$ sau inversiei $D_0 = \frac{K\gamma_\perp}{2g^2}$.

Potenţialul $U(E, E^*)$ capătă în cazul laserului cu un foton forma

$$U(E, E^*) = \frac{|E|^2}{\bar{n}} - H \ln\left(1 + \frac{|E|^2}{n_0}\right). \tag{7.196}$$

Din reprezentarea grafică a potenţialului $U(E, E^*)$ rezultă că sub prag acesta prezintă un minim pentru $r = 0$.Peste prag, originea $r = 0$ devine maxim (instabilitate), iar minimul potenţialului se atinge pe cercul $r = \sqrt{C_1 - 1}$, care corespunde soluţiei semicuantice stabile.

Calculul momentului I^i al intensităţii nenormate se face în general, pentru $n = 1$, în prezenţa cîmpului de intrare, conform definiţiei

$$I^i = \int d^2E\, |E|^{2i} P(E, E^*). \tag{7.197}$$

În cazul particular studiat ($E_I = 0$) formula (7.197) conduce la expresia valorii medii $\langle n \rangle$

$$\langle n \rangle = \langle a^+ a \rangle = n_0 \frac{U(2, H + 3\,;\, n_0/\bar{n})}{U(1, H + 2\,;\, n_0/\bar{n})} \tag{7.198}$$

şi la cea a funcţiei de corelaţie normate de ordinul al doilea $g^2(0)$:

$$g^2(0) = \frac{\langle a^{+2} a^2 \rangle}{\langle a^+ a \rangle^2} = 2 \frac{U(3, H + 4\,;\, n_0/\bar{n})\; U(1, H + 2\,;\, n_0/\bar{n})}{[U(2, H + 3,\; n_0/\bar{n})]^2} \tag{7.199}$$

unde U este funcţia hipergeometrică confluentă de speţa a doua.

Din reprezentarea grafică a expresiilor pentru $\langle n \rangle$ şi $g^2(0)$ se constată că sub prag $g^2(0) = 0$, comportare caracteristică zgomotului generat de emisia spontană, pe cînd peste prag $g^2(0) \to 1$, comportare specifică emisiei coerente.

În ceea ce privește distribuția numărului de fotoni, aceasta evoluează de la distribuția Bose-Einstein sub prag către distribuția Poisson peste prag, fiind regăsite astfel rezultatele teoriei cuantice a laserilor.

Tranziții cu doi fotoni. Laserul cu doi fotoni este descris de ecuațiile (7.171) și (7.192) pentru $n = 2(E_I = 0)$. Se obține ecuația de stare

$$x\left(1 - \frac{C_2|x|^2}{1+|x|^4}\right) = 0 \tag{7.200}$$

unde $C_2 = (2gD_0/K)(\gamma_{\|}/\gamma_{\perp})^{1/2}$, care admite soluțiile

$$x = 0 \text{ pentru orice } C_2$$

și

$$|x|^2 = C_2/2 \pm \frac{1}{2}(C_2^2 - 4)^{1/2},\ C \geqslant 2. \tag{7.201}$$

Din condițiile de stabilitate (7.183) și (7.184) scrise sun forma

$$I^4 + 2I^2 - 2C_2I + 1 > 0 \tag{7.202}$$

$$(I^2 - C_2I + 1)(I^4 + C_2I^3 + 2I^2 - 3C_2I + 1) > 0 \tag{7.203}$$

rezultă că soluția $x = 0$ este stabilă pentru orice C_2, soluția $|x|^2 = C_2/2 + \frac{1}{4}(C_2^2 - 4)^{1/2}$ este, de asemenea, stabilă pe cînd soluția $|x|^2 = C_2/2 + \frac{1}{2}(C_2^2 - 4)^{1/2}$ este instabilă.

Prin urmare, pentru $C_2 > 2$ laserul cu doi fotoni are o comportare bistabilă, tranziția pe ramura superioară fiind puternic influențată de fluctuații.

Pe de altă parte, din expresia potențialului (7.192) scris pentru $n = 2$, distribuția de probabilitate are sub prag un maxim pentru $x = 0$, iar peste prag două maxime, corespunzător celor două soluții stabile.

Calculul momentului intensității $I^{(i)}$ pentru $n = 2$, permite evaluarea mărimilor $\langle a^+a\rangle$, și $g^2(0)$. Se constată că spre deosebire de laserul cu un foton, fluctuațiile sînt mult mai pronunțate în zona de tranziție.

c) Laserul cu semnal injectat. *Tranziții cu un foton.* Ecuația de regim staționar (7.178) se scrie în acest caz sub forma

$$y = x\left(1 - \frac{C_1}{1+|x|^2}\right) \tag{7.204}$$

unde $C_1 = 2g^2D_0/K\gamma_{\perp}$. Se constată că pentru $y = y_0e^{i\theta_0}$ și $x = re^{i\theta}$, din ecuația (7.204) rezultă soluția în fază.

$$\theta = \theta_0$$

$$y_0 = r\left(1 - \frac{C_1}{1+r^2}\right) \quad \text{cu} \quad 1 - \frac{C_1}{1+r^2} > 0 \tag{7.205}$$

și soluția în antifază

$$\theta = \theta_0 + \pi$$

$$y_0 = -r\left(1 - \frac{C_1}{1+r^2}\right),\ 1 - \frac{C_1}{1+r^2} < 0. \tag{7.206}$$

Din studiul dependenței $x = f(y)$ se constată următoarele : pentru $C_1 < 1$, fiecărei valori a lui y îi corespunde o valoare a lui x ; pentru $C_1 > 1$, fiecărei valori a lui y îi corespund mai multe valori pentru x (pentru $y < y_m$ rezultă valorile x_1, x_2 și x_3).

Întrucît soluțiile x_2 și x_3 (în antifază) nu sînt stabile fiind stabilă numai soluția în fază x_1, laserul cu semnul injectat nu prezintă bistabilitate.

Tranziții cu doi fotoni. Ecuația de stare (7.178) se scrie în cazul tranzițiilor cu doi fotoni sub forma :

$$y = x\left(1 - \frac{C_2|x|^2}{1 + |x|^4}\right). \tag{7.207}$$

Ca și în cazul anterior, introducîndu-se notațiile $y = y_0 e^{i\theta_0}$ și $x = re^{i\theta}$ se obține ecuația

$$y_0 = -r\left(1 - \frac{C_2 r^2}{1 + r^4}\right) \tag{7.208}$$

unde

$$\theta = \begin{cases} \pi, & \text{pentru } 1 - \dfrac{C_2 r^4}{1 + r^4} > 0 \\ \theta_0 + \pi, & \text{pentru } 1 - \dfrac{C_2 r^2}{1 + r^4} < 0 \,. \end{cases} \tag{7.209}$$

Sub prag, pentru care $C_2 = 2$, cîmpul cavității x este în fază cu cîmpul de intrare y. Pentru $C_2 < 1{,}14$, x este funcție monotonă de y, iar pentru $1{,}14 < C_2 < 2$ sistemul prezintă bistabilitate (unei valori a lui y îi corespund trei valori pentru x).

Pentru $C > 2$ dependența lui x de y este complicată (cu valori multiple) astfel încît trebuie studiată stabilitatea diferitelor ramuri conform criteriilor (7.183) și (7.184).

Dificultatea realizării laserului cu doi fotoni, determinată de cîștigul inițial scăzut al dispozitivului, este înlăturată în cazul laserului cu doi fotoni cu semnal injectat tocmai de semnalul injectat care îmbunătățește cîștigul inițial.

d) Bistabilitatea optică. *Tranziții cu un foton*. În cazul bistabilității optice ($E_I \neq 0$, $D_0 < 0$), ecuația de stare generală (7.178) se scrie sub forma (7.111)

$$y = x\left(1 + \frac{2C}{1 + |x|^2}\right) \tag{7.210}$$

unde $C = g^2 N / 2K\gamma_\perp$. Pentru $y = y_0 e^{i\theta_0}$ și $x = re^{i\theta}$ se obține

$$y_0 = r\left(1 + \frac{2C}{1 + r^2}\right), \text{ unde } \theta = \theta_0 \tag{7.211}$$

astfel încît cîmpul de ieșire x este întotdeauna în fază cu cîmpul incident. Comportarea bistabilă determinată de ecuația (7.210) a fost analizată în § 7.7.

Efectul fluctuaţiilor care se manifestă printr-o împrăştiere a probabilităţii, determinată de potenţialul $U(E, E^*)$, a fost, de asemenea, discutat în paragraful 7.7.

Pe ramura inferioară a caracteristicii de bistabilitate funcţia de corelaţie $g^2(0) = 2$ (se transmite zgomotul termic), pe cînd pe ramura superioară $g^2(0) \simeq 1$ (este transmis numai semnal coerent). În regiunea de tranziţie, creşterea însemnată a lui $g^2(0)$ evidenţiază creşterea fluctuaţiilor.

Tranziţii cu doi fotoni. În acest caz, atomi pasivi din cavitate sînt excitaţi prin tranziţii bifotonice. Ecuaţia de stare (7.178) devine

$$y = x\left(1 + \frac{C_2|x|^2}{1 + |x|^4}\right) \tag{7.212}$$

unde $C_2 = (-2gD_0/K)\ (\gamma_{\parallel}/\gamma_{\perp})^{1/2}$.

Pentru $C_2 > 5{,}42$, unei valori a lui y îi corespund mai multe valori pentru x, sistemul prezentînd bistabilitate (ramurile inferioară şi superioară sînt stabile).

Se constată că în comparaţie cu bistabilitatea determinată de tranziţiile cu un foton, fluctuaţiile pe ramura inferioară sînt mai scăzute.

III. TEORIA GENERALĂ A PROCESELOR MULTIFOTONICE

8. PROCESE MULTIFOTONICE FUNDAMENTALE

8.1. Caracterizarea generală a proceselor multifotonice fundamentale

O dată cu dezvoltarea laserilor care produc pulsuri gigantice (funcționarea ,,Q-switch''), cu puteri de vîrf de ordinul 10^8W (sau chiar mult mai mari în regimul ,,mode-locking''), s-a creat posibilitatea obținerii unor cîmpuri electrice cu intensități mai mari de 10^6—10^7 V/cm, care încep să devină comparabile cu intensitatea cîmpurilor electrice atomice $\sim 3 \cdot 10^8$ V/cm. În urma interacției dintre radiația laser intensă și substanță, proprietățile acesteia se schimbă ca urmare a efectelor neliniare care apar. Descrierea fenomenologică a efectelor neliniare poate fi făcută cu ajutorul polarizării **P**, indusă în mediu, care poate fi dezvoltată în serie de puteri ale cîmpului intens aplicat **E**, sub forma

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0\chi^{(1)}\mathbf{E} + \varepsilon_0\chi^{(2)}\mathbf{E}^2 + \varepsilon_0\chi^{(3)}\mathbf{E}^3 + \ldots \quad (8.1)$$

Primul termen, care conține susceptibilitatea de ordinul întîi $\chi^{(1)}$, caracterizează propagarea liniară a undelor electromagnetice și descrie proprietățile optice liniare ale mediului prin intermediul indicelui de refracție.

Ceilalți termeni, care conțin susceptibilitățile neliniare de diferite ordine $\chi^{(2)}$, $\chi^{(3)}$, ..., descriu propagarea undelor electromagnetice într-un mediu în care se manifestă efectele neliniare.

Astfel, termenul al doilea, conține susceptibilitatea neliniară de ordinul doi $\chi^{(2)}$, a cărei valoare, cu mult mai mică decît cea de ordinul întîi, a fost pusă în evidență o dată cu generarea celei de-a doua armonici optice, într-un cristal de cuarț care a fost excitat cu un laser cu rubin de mare putere [101].

Efectele neliniare de ordinul doi pot fi descrise cu ajutorul polarizării neliniare corespunzătoare care este o funcţie pătratică de amplitudinea cîmpurilor [137]

$$P_i(\omega_3, \mathbf{r}) = \frac{1}{2}\chi^{(2)}_{ijk}(-\omega_3;\ \omega_1, \omega_2)E_j(\omega_1)E_k(\omega_2)\times$$

$$\times \exp[i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2)\mathbf{r} - i(\omega_1 + \omega_2)t] + \text{c.c.} \qquad (8.2)$$

unde i, j, k specifică coordonatele carteziene. Polarizarea corespunzătoare sumei frecvenţelor $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ acţionează ca o sursă în ecuaţiile lui Maxwell

$$\nabla\times(\nabla\times\mathbf{E}) + \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0\frac{\partial^2\mathbf{P}}{\partial t^2} \qquad (8.3)$$

iar radiaţia emisă este proporţională cu $|\chi^{(2)}(\omega_3)|^2$. Susceptibilitatea neliniară de ordinul doi este de fapt un tensor de ordinul trei, care caracterizează sistemele care nu au centru de inversie.

Relaţia (8.2) descrie generarea armonicii a doua dacă $\omega_1 = \omega_2$. Tot cu ajutorul relaţiei (8.2), dacă se înlocuieşte ω_2 cu $-\omega_2$ mai pot fi descrise fenomenele de generare parametrică a radiaţiilor a căror frecvenţă este egală cu diferenţa frecvenţelor $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$; fenomenul de ,,redresare'' a luminii care constă în apariţia unei tensiuni continue la capetele unui cristal piezoelectric excitat de o radiaţie intensă pentru care este îndeplinită condiţia $\omega_2 = -\omega_1$, precum şi efectul electrooptic liniar (Pockels) obţinut în cazul în care $\omega_2 = 0$. Dacă frecvenţa ω_2 se află în domeniul undelor radio sau microundelor se obţine fenomenul de modulare a frecvenţei luminii. Întrucît susceptibilitatea neliniară de ordinul doi determină cuplarea a trei unde electromagnetice, cu ajutorul ei mai pot fi caracterizate şi fenomenele de oscilaţie parametrică.

Deşi în medii optice dense un rol important îl joacă corecţiile determinate de cîmpurile locale care pot schimba valoarea lui $\chi^{(2)}$, descrierea fenomenologică a fenomenelor amintite mai sus nu este afectată de aceste corecţii.

Al treilea termen al dezvoltării, care conţine susceptibilitatea neliniară de ordinul trei $\chi^{(3)}$, determină efecte neliniare ca: absorbţia a doi fotoni [125], generarea armonicii a treia [125], împrăştierea Raman stimulată [105], mixarea neliniară [104], dependenţa indicelui de refracţie de intensitate [105, 125], care sînt prezentate în fig. 8.1 a, b, c, d, e, f, pentru atomii de Na.

În medii caracterizate prin existenţa unui centru de inversie, efectele neliniare de ordinul trei sînt descrise de polarizarea neliniară corespunzătoare care depinde de cubul amplitudinilor cîmpului electric printr-o relaţie de forma:

$$P_i(\omega_4, \mathbf{r}) = \frac{1}{2}\chi^{(3)}_{ijkl}(-\omega_4;\ \omega_1, \omega_2, \omega_3)\times$$

$$\times E_j(\omega_1)E_k(\omega_2)E_l(\omega_3)\exp[i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3)\mathbf{r} - i\omega_4 t] + \text{c.c.} \qquad (8.4)$$

Şi în acest caz polarizarea neliniară de ordinul trei corespunzătoare sumei frecvenţelor $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ acţionează ca o sursă în ecuaţia undelor generînd radiaţii a căror intensitate este proporţională cu $|\chi^{(3)}_{ijk}(-\omega_4;\ \omega_1, \omega_2, \omega_3, \omega_4)|^2$.

8.2. Exemple de procese multifotonice fundamentale

8.2.1. Generarea armonicii a treia (fig. 8.1, c)

Fenomenul de generare a armonicii a treia este descris de polarizarea şi respectiv susceptibilitatea neliniară de ordinul trei corespunzătoare frecvenţei $\omega_4 = 3\omega_1$, unde $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3$. Dependenţa intensităţii armonicii generate de dezacordul vectorilor de undă, precum şi generarea armonicii a treia prin absorbţie rezonantă a doi fotoni vor fi prezentate în §15.2.

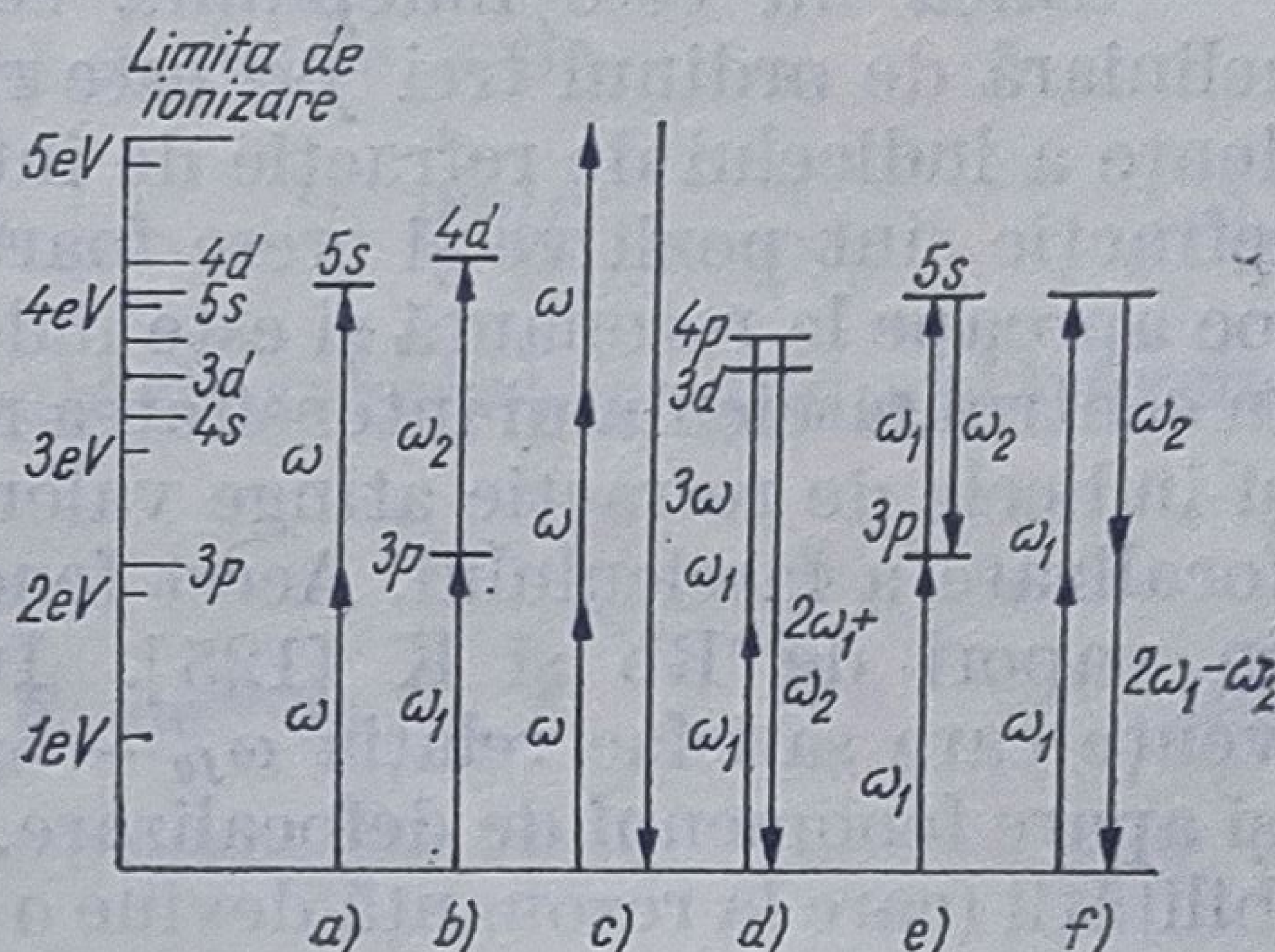


Fig. 8.1.

8.2.2. Absorbţia a doi fotoni (fig. 8.1 a şi b)

Absorbţia a doi fotoni are loc atunci cînd frecvenţa corespunzătoare tranziţiei între două stări $|g\rangle \to |f\rangle$ care au aceeaşi paritate îndeplineşte condiţia : $\omega_{gf} = \omega_1 + \omega_2$.

Absorbţia a doi fotoni poate fi obţinută şi cu ajutorul unui singur fascicul laser dacă $\omega_1 = \omega_2$ şi joacă un rol important în spectroscopia neliniară. Procesul de absorbţie a doi fotoni se deosebeşte de procesele de absorbţie în cascadă care implică un singur foton, prin lărgimea liniilor şi a ratelor de relaxare care sînt determinate de populaţia nivelului intermediar (capitolul 17).

8.2.3. Efect Raman stimulat (fig. 8.1, c)

Dacă diferenţa dintre cele două frecvenţe $\omega_1 - \omega_2 = \omega_{fg}$ corespunde despicării energetice a nivelelor $|f\rangle$ şi $|g\rangle$ şi în plus ω_2 se înlocuieşte cu $-\omega_2$, ecuaţia (8.3) descrie procesul de absorbţie negativă sau de emisie stimulată a radiaiţei cu frecvenţa ω_2 a cărei intensitate este proporţională cu intensitatea radiaţiei cu frecvenţa ω_1. Efectul Raman stimulat astfel obţinut poate deveni rezonant dacă frecvenţa ω_1 este aproximativ egală cu frecvenţa de tranziţie dintre două nivele care implică un singur foton şi a fost observat în Ba şi K [104, 125].

8.2.4. Fenomene de generare parametrică prin mixarea a patru unde (fig. 8.1, f)

Generarea unei radiaţii cu frecvenţa $\omega_4 = 2\omega_1 + \omega_2$ a cărei intensitate este proporţională cu $|\chi^{(3)}(-2\omega_1 - \omega_2; \omega_2, \omega_1)|^2$ este posibilă dacă în relaţia (8.4) se consideră $\omega_3 = \omega_1$. Ea a fost observată experimental în vapori de Na [140] şi a permis conversia unei radiaţii cu frecvenţa corespunzătoare unui laser cu $\lambda = 10{,}6$ μm din domeniul infraroşu, într-o nouă radiaţie din domeniul ultraviolet. De asemenea, au mai fost obţinute radiaţii cu frecvenţa $\omega_4 = 2\omega_1 - \omega_2$, rezultate în urma înlocuirii frecvenţei ω_2 cu $-\omega_2$, în Rb, de exemplu [141] (capitolul 13).

8.2.5. Dependența indicelui de refracție de intensitatea radiației. Saturarea absorbției

În cazul cînd frecvențele radiațiilor îndeplinesc condițiile $\omega_3 = \omega_1$; $\omega_2 = -\omega_1$ polarizarea neliniară corespunzătoare frecvenței $\omega_4 = \omega_1$ este dată de relația :

$$P^{NL}(\omega_1) = \chi^{(3)}(-\omega_1; \omega_1, -\omega_1, \omega_1)E(\omega_1)E^*(\omega_1)E(\omega_1). \qquad (8.5)$$

Dacă nu este îndeplinită condiția de rezonanță, susceptibilitatea neliniară de ordinul trei $\chi^{(3)}$ este reală și aceasta corespunde unei dependențe a indicelui de refracție de intensitatea radiației. Valorile indicelui de refracție sînt pozitive și cresc foarte mult dacă fenomenul de excitare are loc aproape la rezonanță și este îndeplinită condiția $\omega_{fg} - \omega_1 > 0$. Întrucît în centrul fasciculului intensitatea radiației este maximă, în această regiune și indicele de refracție atinge valorile cele mai mari, obținîndu-se astfel o focalizare a fasciculului. Acest fenomen de autofocalizare a fost observat în vapori de Rb și K [125]. În apropierea rezonanței, pentru frecvențe care satisfac relația $\omega_{fg} - \omega_1 < 0$, susceptibilitatea devine negativă și apare fenomenul de defocalizare. Întrucît și partea imaginară a susceptibilității (care la rezonanță devine o mărime complexă) este negativă, rezultă că și absorbția liniară scade cu creșterea intensității radiației. Acesta este fenomenul de saturare a absorbției care tinde să egalizeze populațiile nivelelor $|f\rangle$ și $|g\rangle$ implicate în tranziții.

Studiul efectelor neliniare este determinat de posibilitatea folosirii acestor efecte la producerea convertorilor de frecvență, care transformă radiația unui laser prin fenomenele de generare de armonici sau de mixare neliniară într-o nouă radiație coerentă cu frecvență diferită de cea a sursei, aceasta conducînd la o importantă extindere a spectrului. De asemenea, studiul efectelor neliniare permite obținerea de informații privind proprietățile microscopice ale atomilor și moleculelor care compun mediul neliniar

9. TEORIA SUSCEPTIBILITĂȚILOR OPTICE NELINIARE

9.1. Deducerea formulei susceptibilității neliniare de ordinul n în aproximația neglijării structurii fine a nivelelor energetice

Pentru a deduce formula susceptibilității neliniare de ordinul n, se consideră că răspunsul mediului aflat în interacție cu un cîmp electric exterior are un caracter local din punct de vedere al întinderii spațiale. Această aproximație care caracterizează majoritatea proceselor neliniare

care au loc în medii gazoase se bazează pe luarea în considerație numai a interacțiilor electrice de dipol. Dacă se iau în calcul interacțiile de multipol apar variații spațiale ale cîmpurilor datorită forțelor de interacție intermoleculare. Fenomenele legate de contribuția termenilor de multipol joacă un rol important în procesele de ionizare care se produc prin absorbția a doi fotoni, în cele de generare a armonicii a doua în domeniul microundelor și altele, care în ultimul timp prezintă un interes din ce în ce mai mare.

Dacă se neglijează polarizarea spontană care există în mediu în absența cîmpului, pe baza relației (9.1) se poate scrie

$$\mathbf{P}(t) = \mathbf{P}^{(0)} + \mathbf{P}^{(1)}(t) + \mathbf{P}^{(2)}(t) + \ldots + \mathbf{P}^{(r)}(t) + \ldots \tag{9.1}$$

Polarizarea de ordinul r, $\mathbf{P}^{(r)}(t)$, poate fi exprimată cu ajutorul transformatei Fourier

$$E(\omega) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} E(\tau)e^{i\omega\tau}d\tau \tag{9.2}$$

a cîmpului electric aplicat,

$$E(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} E(\omega)e^{-i\omega t}d\omega \tag{9.3}$$

printr-o relație de forma

$$P^{(r)}(t) = \varepsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega_1 \ldots \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega_r \chi^{(r)}_{\sigma\alpha_1\ldots\sigma_r}(\omega_1, \ldots, \omega_r) \times$$

$$\times E_{\alpha_1}(\omega_1) \ldots E_{\alpha_r}(\omega_r)e^{-it\sum\limits_{m=1}^{r}\omega_m} \tag{9.4}$$

în care $\chi^{(r)}_{\sigma\alpha_1\ldots\alpha_r}$ reprezintă tensorul susceptibilității de ordinul r. Tensorul susceptibilității poate fi ales în așa fel încît să fie invariant față de $r!$ permutări ale perechilor $\alpha_1\omega_1$, $\alpha_2\omega_2$, ... $\alpha_r\omega_r$, aceasta fiind așa-numita proprietate de permutare a simetriilor.

Pentru a obține formula explicită a tensorului susceptibilității se consideră un mediu de volum V care conține N particule încărcate (electroni sau ioni) cu sarcinile q_i, și cu vectorii de poziție $\mathbf{r}_i$. Dacă nu se ia în considerare cîmpul magnetic generat de cîmpul electric $E(t)$, iar sistemul de particule este considerat ca un întreg, momentul de dipol $\mathbf{d}$ al sistemului de particule încărcate este:

$$\mathbf{d} = \sum_i q_i \mathbf{r}_i. \tag{9.5}$$

Polarizarea macroscopică, definită ca fiind media momentului de dipol pe unitatea de volum, este dată de relația:

$$\mathbf{P}(t) = V^{-1}\langle \mathbf{d} \rangle. \tag{9.6}$$

Cu ajutorul operatorului densitate al sistemului de particule $\rho(t)$, relaţia (9.6) se mai poate scrie astfel* (anexa 1)

$$P(t) = V^{-1}\text{Urm}\{\rho(t)d\}. \tag{9.7}$$

Ecuaţia de mişcare a operatorului densitate ρ, care descrie evoluţia în timp a sistemului de particule este*

$$i\hbar \frac{d}{dt}\rho(t) = [H, \rho(t)] = [H_0 + H_i(t), \rho(t)] \tag{9.8}$$

unde hamiltonianul întregului ansamblu H (sistem de particule + cîmp) este format din hamiltonianul sistemului neperturbat H_0 şi din hamiltonianul ce caracterizează interacţia

$$H_i(t) = -\mathbf{dE}(t). \tag{9.9}$$

Rezolvarea ecuaţiei (9.8) se face pe baza teoriei perturbaţiilor (anexa 3), admiţînd pentru operatorul densitate o dezvoltare în serie de puteri de forma

$$\rho(t) = \rho_0 + \rho_1(t) + \rho_2(t) + \ldots + \rho_r(t) + \ldots \tag{9.10}$$

În relaţia (9.10)

$$\rho_0 = \frac{e^{-H_0/kT}}{\text{Urm}\{e^{-H_0/kT}\}} \tag{9.11}$$

reprezintă operatorul densitate la echilibru, k constanta lui Boltzmann iar T temperatura absolută.

Pe baza modelului prezentat în lucrarea [108] elementul de matrice de ordinul r al operatorului densitate $\rho(t)$ se determină cu ajutorul relaţiei generale

$$U_0(-t)\rho_r(t)U_0(t) = i\hbar^{-r}\int_{-\infty}^{t} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \ldots \int_{-\infty}^{t_{r-1}} dt \times$$

$$\times [H_i'(t_1), [H_i'(t_2) \ldots [H_i'(t_r), \rho_0]] \ldots] \tag{9.12}$$

unde

$$H_i'(t) = U_0(-t)H_i(t)U_0(t) \tag{9.13}$$

iar

$$U_0(t) = e^{-\frac{i}{\hbar}H_0 t} \tag{9.14}$$

reprezintă operatorul de evoluţie în timp în absenţa perturbaţiei care se bucură de proprietăţile

$$U_0(0) = 1 \tag{9.15}$$

$$U_0(t)U_0(-t) = 1. \tag{9.16}$$

Înlocuind relaţia (9.10) în relaţia (9.7) se obţine pentru polarizarea neliniară de ordinul r expresia:

$$\mathbf{P}^{(r)}(t) = V^{-1}\cdot \text{Urm}\{\rho_r(t)\mathbf{d}\} \text{ pentru } r \neq 0 \tag{9.17}$$

---

* În continuare, pentru simplificarea scrierii nu se mai specifică operatorii prin simbolul grafic.

Tensorul susceptibilității de ordinul r se obține în urma înlocuirii expresiei (9.12) în (9.17) și comparării cu relația (9.4), sub forma

$$\chi^{(r)}_{\sigma\alpha_1,\dots,\alpha_r}(\omega_1, \dots, \omega_r) = \frac{1}{r!}\sum \frac{1}{V(-i\hbar)^r}\int_{-\infty}^{0} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \times$$

$$\times \dots \int_{-\infty}^{t_{r-1}} dt_r \mathrm{Urm}\{\rho_0[\dots[[d_\alpha, d_{\alpha_1}(t_1), d_{\alpha_2}(t_2) \dots \times$$

$$\times d_{\alpha_r}(t_r)]]\} \cdot \exp\left[-i\sum_{m=1}^{r} \omega_m t_m\right]. \tag{9.18}$$

În relația (9.18) însumarea are loc după toate cele $r!$ permutări ale perechilor $\alpha_1\omega_1, \dots, \alpha_r\omega_r$.

Dacă se consideră că sistemul este format dintr-un număr N de particule (atomi sau molecule) independente, hamiltonianul și respectiv momentul de dipol al întregului sistem se înlocuiesc în relațiile (9.5) și (9.8) cu sume de forma

$$H_0 = \sum_m H_m \tag{9.19}$$

$$\mathbf{d} = \sum_m \mathbf{d}_m. \tag{9.20}$$

De asemenea, operatorul densitate al întregului sistem la echilibru este dat de produsul celor N operatori ai particulelor care compun sistemul

$$\rho_0 = \rho_1 \dots \rho_m \dots \rho_N \tag{9.21}$$

$$\text{unde: } \rho_m = \left[\frac{e^{-H_0/kT}}{\mathrm{Urm}\{e^{-H_0/kT}\}}\right]^{1/N} \cdot e^{-\frac{H_m}{kT}}. \tag{9.22}$$

Similar, se poate scrie

$$U_0(t) = e^{-\frac{i}{\hbar}H_0 t} = U_1(t)U_2(t) \dots U_m(t) \dots U_N(t) \tag{9.23}$$

unde

$$U_m(t) = e^{-\frac{i}{\hbar}H_m t}. \tag{9.24}$$

Deși modelul sistemului format din N particule independente prezentat prin relațiile (9.19)—(9.24) este numai aproximativ, cu ajutorul lui se poate pune în evidență conținutul fizic al susceptibilităților.

Notînd cu $\boldsymbol{\varepsilon}_i$ vectorii unitate ai polarizării și cu $a, b_1, \dots, b_n$ stările energetice ale particulelor sistemului (atomi, molecule) considerate în

repaus (a specificînd starea fundamentală), în urma calculului integralelor din relaţia (9.18) se obţine pentru susceptibilitatea neliniară de ordinul n relaţia

$$\chi^{(n)}_{\sigma\alpha_1,\ldots,\alpha_n}(-\omega_\sigma;\ \omega_1\ \ldots\ \omega_n) = S_T \frac{n_0}{n!\hbar^n\varepsilon_0} \sum_{ab_1\ldots b_n} \rho^0_{aa} \times$$

$$\times \frac{\varepsilon^*_\sigma \mathbf{d}^\sigma_{ab_1}\varepsilon_1 \mathbf{d}^{\alpha_1}_{b_1b_2}\cdots\varepsilon_n \mathbf{d}^{\alpha_{n-1}}_{b_{n-1}b_n}}{(\omega_{ab_1}-\omega_1-\omega_2-\ldots-\omega_n)(\omega_{ab_2}-\omega_2-\omega_3\ldots-\omega_n)\ldots(\omega_{ab_n}-\omega_n)}. \quad (9.25)$$

Operaţia de însumare din relaţia (9.25) are loc după toate stările excitate legate urmînd ca pentru stările libere suma să fie înlocuită printr-o integrală; S_T reprezintă aşa numita operaţie de simetrizare totală, conform căreia însumarea mai trebuie să aibă loc şi după cele $n!$ permutări ale perechilor $\alpha_1\omega_1, \ldots, \alpha_n\omega_n$. Pentru deducerea formulei susceptibilităţii neliniare de ordinul n (9.25) s-a ţinut seama că frecvenţele de tranziţie ω_{ij} între două stări de energie E_i şi E_j verifică relaţia $\omega_{ij} = -\omega_{ji}$, iar

$$\omega_\sigma = \omega_1 + \ldots + \omega_n. \quad (9.26)$$

În relaţia (9.25) $n_0 = \dfrac{N}{V}$ reprezintă densitatea de particule, iar ρ^0_{aa} probabilitatea de ocupare a nivelului fundamental la echilibru termic. Considerînd starea atomilor sau moleculelor aflate în mişcare de rotaţie descrisă de vectorul de stare $|\gamma JN\rangle$, probabilitatea de ocupare a nivelului fundamental poate fi scrisă astfel

$$\sum_a \rho^0_{aa} = \sum_{N_a} \rho(\gamma_a J_a N_a) \quad (9.27)$$

unde $\overline{\rho(\gamma_a J_a)}$ reprezintă probabilitatea ca molecula neperturbată din exterior să ocupe o stare de energie $\hbar\Omega_{\gamma_a J_a N_a}$ cu degenerarea $2J_a+1$, numărul cuantic N_a specificînd starea energetică.

Admiţînd că vectorii polarizare ε_i şi ε^*_i (sau componentele cîmpurilor $E(\omega_i)$, $E^*(\omega_i)$ la frecvenţele ω_i) acţionează ca nişte operatori de creare respectiv de anihilare a fotonilor, relaţia (9.25) poate fi reprezentată şi grafic ca în fig. 9.1.

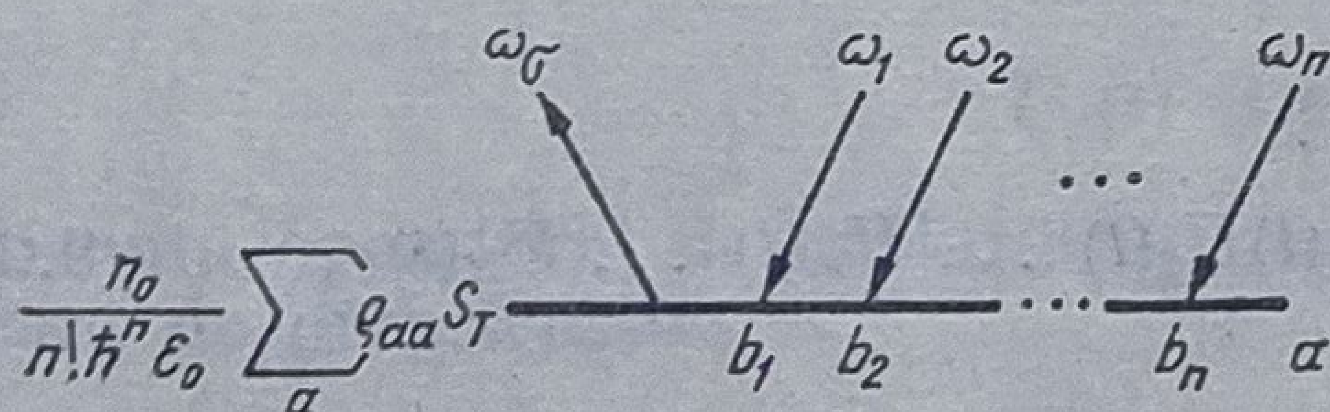


Fig. 9.1.

Într-o astfel de reprezentare săgeata cu vîrful în jos specifică fenomenul de absorbţie al unui foton cu frecvenţă pozitivă (ω_i), care este asociat cu anihilarea sa, iar săgeata cu vîrful în sus specifică fenomenul de emisie al unui foton cu frecvenţă negativă $(-\omega_i)$, care la rîndul său este asociat cu crearea sa. Această reprezentare poate fi folosită la calculul susceptibilităţilor neliniare de diferite ordine.

Astfel, în cazul susceptibilităţii neliniare de ordinul trei pentru

$$\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega \quad (9.28)$$

relaţia (9.25) devine

$$\chi^{(3)}(-3\omega\,;\,\omega,\,\omega,\,\omega) = \frac{n_0}{\hbar^3\varepsilon_0}\sum_{ab_1b_2b_3}\rho^0_{aa}\times\left[\frac{\boldsymbol{\varepsilon}^*_{3\omega}\cdot\mathbf{d}_{ab_1}\boldsymbol{\varepsilon}_{\omega}\cdot\mathbf{d}_{b_1b_2}\cdot\boldsymbol{\varepsilon}_{\omega}\cdot\mathbf{d}_{b_2b_3}\boldsymbol{\varepsilon}_{\omega}\cdot\mathbf{d}_{b_3a}}{(\omega_{b_1a}-3\omega)(\omega_{b_2a}-2\omega)(\omega_{b_3a}-\omega)}+\right.$$

$$+\frac{\boldsymbol{\varepsilon}_{\omega}\cdot\mathbf{d}_{ab_1}\boldsymbol{\varepsilon}^*_{3\omega}\cdot\mathbf{d}_{b_1b_2}\boldsymbol{\varepsilon}^{-}_{\omega}\cdot\mathbf{d}_{b_2b_3}\boldsymbol{\varepsilon}_{\omega}\cdot\mathbf{d}_{b_3a}}{(\omega_{ab_1}+\omega)(\omega_{b_2a}-2\omega)(\omega_{b_3a}-\omega)}+\frac{\boldsymbol{\varepsilon}_{\omega}\cdot\mathbf{d}_{ab_1}\boldsymbol{\varepsilon}_{\omega}\cdot\mathbf{d}_{b_1b_2}\boldsymbol{\varepsilon}^*_{3\omega}\cdot\mathbf{d}_{b_2b_3}\boldsymbol{\varepsilon}_{\omega}\cdot\mathbf{d}_{b_3a}}{(\omega_{b_2a}+\omega)(\omega_{b_1a}+2\omega)(\omega_{b_3a}-\omega)}+$$

$$\left.+\frac{\boldsymbol{\varepsilon}_{\omega}\cdot\mathbf{d}_{ab_1}\boldsymbol{\varepsilon}_{\omega}\cdot\mathbf{d}_{b_1b_2}\boldsymbol{\varepsilon}^{-}_{\omega}\cdot\mathbf{d}_{a_2b_3}\boldsymbol{\varepsilon}^*_{3\omega}\mathbf{d}_{b_3a}}{(\omega_{b_1a}+\omega)(\omega_{b_2a}+2\omega)(\omega_{b_3a}+3\omega)}\right]. \tag{9.29}$$

Operaţia de simetrizare totală S_T din relaţia (9.25) conduce la patru termeni diferiţi, fiecare din ei apărînd de şase ori în suma după toate stările energetice, conform reprezentării grafice din figura 9.2.

Analizînd relaţia (9.25) se observă că dacă este îndeplinită condiţia de rezonanţă, expresia susceptibilităţii devine infinită. În acest caz trebuie să se ţină seama de forţele de interacţie dintre particulele care compun sistemul şi de pierderi [192].

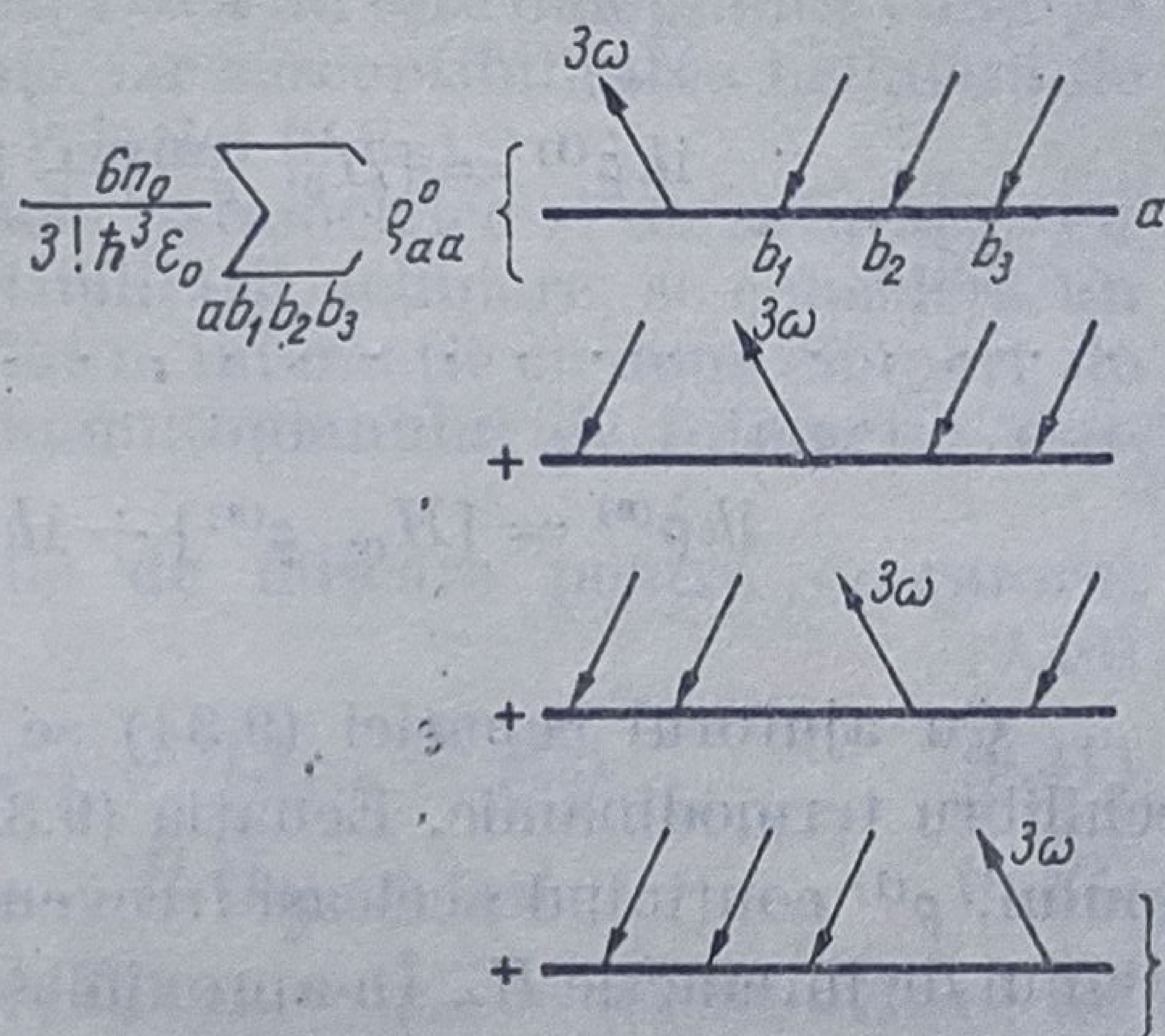


Fig. 9.2.

Metoda generală de calcul a susceptibilităţilor neliniare de diferite ordine, cu luarea în consideraţie a pierderilor care au loc în sistem, a fost elaborată de către N. Bloembergen şi Y. R. Shen în lucrarea [109] pe baza generalizării expresiilor susceptibilităţilor obţinute pentru un dielectric neliniar ideal [110].

În acest caz, la hamiltonianul sistemului din relaţia (9.8) mai trebuie adăugat încă un termen care caracterizează pierderile şi procesele de relaxare, iar ecuaţia de mişcare pentru operatorul densitate devine

$$i\hbar\dot{\rho} = [H_0,\ \rho] + [H_i,\ \rho] + i\hbar\left(\frac{\partial\rho}{\partial t}\right)_p \tag{9.30}$$

Elementele de matrice diagonale şi nediagonale care caracterizează pierderile se calculează cu ajutorul relaţiilor

$$\left(\frac{\partial\rho_{aa}}{\partial t}\right)_p = \sum_n w_{an}\rho_{nn} - \sum_n w_{na}\rho_{aa} \tag{9.31}$$

$$\left(\frac{\partial\rho_{ab}}{\partial t}\right)_p = -\gamma_{ab}\rho_{ab}. \tag{9.32}$$

Cele N elemente diagonale ale matricei care caracterizează pierderile determină $N-1$ timpi de relaxare longitudinală T_1, iar valorile lor inverse

sînt tocmai valorile proprii ale determinantului ratelor de tranziție w_{nn}. Elementele nediagonale sînt legate de ratele de tranziție w_{ab}, w_{ba} care sînt determinate de valorile finite ale timpilor de viață. În cazul particular al unui sistem cuantic cu două nivele energetice a și b, ratele de relaxare γ_{ab} sînt date de relația

$$\gamma_{ab} = \frac{1}{2T_1} = w_{ab} + w_{ba} \tag{9.33}$$

unde $\gamma_{ab} = T_2^{-1}$ (§ 1.6).

Soluția pentru operatorul densitate care determină o stare staționară a sistemului, se caută sub forma unei serii de puteri care verifică ecuațiile

$$i\hbar\dot{\rho}^{(0)} = [H_0, \rho^{(0)}] + i\hbar\left(\frac{\partial}{\partial t}\right)\rho_p^{(0)} \tag{9.34}$$

$$i\hbar\dot{\rho}^{(1)} = [H_0, \rho^{(1)}] + i\hbar\left(\frac{\partial}{\partial t}\right)\rho_p^{(1)} + [H_i, \rho^{(0)}] \tag{9.35}$$

. . . .

$$i\hbar\dot{\rho}^{(n)} = [H_0, \rho^{(n)}] + i\hbar\left(\frac{\partial}{\partial t}\right)\rho_p^{(n)} + [H_i, \rho^{(n-1)}]. \tag{9.36}$$

Cu ajutorul ecuației (9.34) se poate calcula operatorul densitate la echilibru termodinamic. Ecuația (9.35) determină răspunsul liniar al sistemului, $\rho^{(1)}$ conținînd aceleași frecvențe ca și cele care intervin în hamiltonianul de interacție H_i. În aproximația de ordinul doi, $\rho^{(2)}$ pune în evidență procesele parametrice întrucît conține frecvențe corespunzătoare sumei, diferenței armonicilor cîmpului excitator, cît și termeni liberi ca rezultat al interacției dintre doi termeni care conțin frecvențe egale dar de semn contrar. Termenii liberi pun în evidență, în primă aproximație, efectele de saturație. Înlocuind pe $\rho^{(2)}$ în ecuația care conține pe $\rho^{(3)}$ se obțin componentele Fourier ale operatorului densitate într-o nouă aproximație ș.a.m.d.

Astfel, considerînd că sistemul interacționează cu două cîmpuri de frecvențe ω_1 și ω_2, hamiltonianul de interacție este

$$H_i = -\mathbf{d}(\mathbf{E}_1 e^{-i\omega_1 t} + \mathbf{E}_2 e^{-i\omega_2 t}). \tag{9.37}$$

Termenul liniar nediagonal care conține frecvența ω_1 se poate scrie

$$\{\rho^{(1)}_{n''n'}\}^{(\omega_1)} = \frac{1}{2\hbar}\cdot\frac{\mathbf{d}_{n''n'}\cdot\mathbf{E}_1}{\omega_1 - \omega_{n''n'} + i\gamma_{n'n'}}(\rho^{(0)}_{n''n'} - \rho^{(0)}_{n'n'}) \tag{9.38}$$

unde $\rho^{(0)}_{n''n'}$ este dat de relația (9.10). Expresii similare se obțin și pentru termenii care conțin frecvențele $-\omega_1$ și $\pm\omega_2$.

Ținînd seama de expresia termenului liniar $\rho^{(1)}$, se poate calcula cu ajutorul ecuației (9.36), termenul $\rho^{(2)}$ în aproximația de ordinul doi, prin

înlocuirea indicelui n cu valoarea doi, sub forma

$$\{\rho_{nn'}^{(2)}\}^{(\omega_1+\omega_1)} = \sum_{n''\neq n,\, n'} \frac{(\mathbf{d}_{nn''}\,\mathbf{E}_2)\,(\mathbf{d}_{n''n'}\cdot\mathbf{E}_1)}{4\hbar^2(\omega_1+\omega_2-\omega_{nn'}+\mathrm{i}\gamma_{nn'})}\times$$

$$\times\left(\frac{\rho_{n'n'}^{(0)}-\rho_{n''n''}^{(0)}}{\omega_1-\omega_{n''n'}+\mathrm{i}\gamma_{n''n'}}+\frac{\rho_{nn}^{(0)}-\rho_{n''n''}^{(0)}}{\omega_2-\omega_{nn''}+\mathrm{i}\gamma_{nn''}}\right)+$$

$$\sum_{n''\neq n,n'}\frac{(\mathbf{d}_{nn''}\mathbf{E}_1)\,(\mathbf{d}_{n''n'}\mathbf{E}_2)}{4\hbar^2(\omega_1+\omega_2-\omega_{nn'}+\mathrm{i}\gamma_{nn'})}\cdot\left(\frac{\rho_{n'n'}^{(0)}-\rho_{n''n''}^{(0)}}{\omega_2-\omega_{n''n'}+\mathrm{i}\gamma_{n''n'}}+\frac{\rho_{nn}^{(0)}-\rho_{n''n''}^{(0)}}{\omega_1-\omega_{nn''}+\mathrm{i}\gamma_{nn''}}\right). \tag{9.39}$$

Folosind acest procedeu se pot obține expresiile termenilor $\rho^{(n)}$ în diferite ordine de aproximație, iar cu ajutorul lor se poate calcula expresia polarizării și respectiv a susceptibilității corespunzătoare.

La rezonanță, termenii $\mathrm{i}\gamma_{nn}$ joacă un rol foarte important în evidențierea efectelor parametrice și de saturație. Dacă nu este îndeplinită condiția de rezonanță, termenii $\mathrm{i}\gamma_{nn}$ pot fi neglijați, iar susceptibilitatea neliniară de diferite ordine se calculează cu ajutorul relației (9.25).

Pentru a pune în evidență procesele parametrice și de saturație cu ajutorul polarizarii, respectiv a susceptibilității neliniare, se consideră un sistem cu două nivele energetice a și b aflat în interacție cu două cîmpuri de frecvențe ω_1 și ω_2, astfel că expresia hamiltonianului de interacție este dată de relația (9.37).

Considerînd că $\gamma_{ab}^{-1} = T_2$, ecuațiile de mișcare pentru operatorul densitate devin (9.40)

$$\mathrm{i}\hbar\,\dot{\rho}_{ab} = -\hbar(\omega_{ba}+\mathrm{i}/T_2)\rho_{ab} + H_i(\rho_{bb}-\rho_{aa}) \tag{9.41}$$

$$\mathrm{i}\hbar\,\dot{\rho}_{ba} = \hbar(\omega_{ba}-\mathrm{i}/T_2)\rho_{ba} - H_i(\rho_{bb}-\rho_{aa}) \tag{9.42}$$

$$\mathrm{i}\hbar(\dot{\rho}_{bb}-\dot{\rho}_{aa}) = 2(H_i\rho_{ab}-\rho_{ba}H_i) - (\mathrm{i}\hbar/T_1)(\rho_{bb}-\rho_{aa}-\rho_{bb}^{(0)}+\rho_{aa}^{(0)}) \tag{9.43}$$

$$\rho_{aa}+\rho_{bb} = 1. \tag{9.44}$$

Admițînd că operatorul momentului de dipol are numai elemente nediagonale, în aproximația de ordinul întîi rezultă

$$\rho_{ba}^{(1)}(\omega_1) = -\frac{\mathbf{d}_{ba}\mathbf{E}_1}{\omega_1-\omega_{ba}+\mathrm{i}/T_2}(\rho_{aa}^{(0)}-\rho_{bb}^{(0)}). \tag{9.45}$$

Ținînd seama că :

$$\rho_{ba}^{(\omega_1)} = \rho_{ab}^{*(-\omega_1)} \tag{9.46}$$

se pot obține și expresiile pentru $\rho_{ba}^{(1)}(\omega_2)$, $\rho_{ab}^{(1)}(\omega_1)$ și $\rho_{ab}^{(1)}(\omega_2)$.

În aproximația de ordinul doi, termenii liberi obținuți cu ajutorul diferenței dintre elementele diagonale ale densității,

$$\{\rho_{ab}^{(2)}-\rho_{aa}^{(2)}\}^{(0)} = \left[\frac{-2T_1T_2\hbar^{-2}|\mathbf{d}_{ab}|^2|\mathbf{E}_1|^2}{(\omega_1-\omega_{ba})^2T_2^2+1}+\frac{-2T_1T_2\hbar^{-2}|\mathbf{d}_{ab}|^2|\mathbf{E}_2|^2}{(\omega_2-\omega_{ba})^2T_2^2+1}\right]\times$$

$$\times\{\rho_{bb}^{(0)}-\rho_{aa}^{(0)}\} \tag{9.47}$$

caracterizează fenomenul de saturație (numitorul se dezvoltă în serie de puteri.)

Tot în aproximația de ordinul doi, componentele diferențelor dintre elementele diagonale corespunzătoare diferenței frecvențelor

$$\{\rho_{bb}^{(2)} - \rho_{aa}^{(2)}\}^{(\omega_1-\omega_2)} = \frac{2\hbar^{-2}|\mathbf{d}_{ab}|^2 \mathbf{E}_1\mathbf{E}_2^*}{\omega_1 - \omega_2 + i/T_1}\left[\frac{1}{\omega_2 - \omega_{ab} + i/T_2} + \right.$$

$$\left. + \frac{1}{\omega_1 - \omega_{ba} + i/T_2}\right](\rho_{bb}^{(0)} - \rho_{aa}^{(0)}) \tag{9.48}$$

și

$$\{\rho_{bb}^{(2)} - \rho_{aa}^{(2)}\}^{(\omega_2-\omega_1)} = [(\rho_{bb}^{(2)} - \rho_{aa}^{(2)})^{(\omega_1-\omega_2)}]^* \tag{9.49}$$

generează o polarizare cu frecvența $\pm(\omega_2 - \omega_1)$ care caracterizează procesele parametrice.

Dacă în relația (9.41) diferența $\rho_{bb} - \rho_{aa}$ este înlocuită cu expresia diferenței în aproximația de ordinul doi, se poate obține termenul $\rho_{ab}^{(3)}$ în aproximația de ordinul trei care conține componente cu frecvențele $2\omega_1 - \omega_2$ și $2\omega_2 - \omega_1$ care de asemenea caracterizează procesele parametrice. În cazul particular cînd $\omega_1 = -\omega_2$, $\rho_{ab}^{(3)}$ descrie generarea armonicii a treia.

Procedeul poate continua la infinit, obținîndu-se aproximații succesive corespunzătoare puterilor cîmpurilor E_1 și E_2.

9.2. Calculul susceptibilității neliniare de diferite ordine pentru vaporii metalelor alcaline cu luarea în considerare a structurii fine a nivelelor energetice

Pentru obținerea unor valori cît mai exacte ale susceptibilităților neliniare de diferite ordine trebuie luată în considerare structura fină a nivelelor energetice. Introducînd în formalismul densitate ratele de relaxare, se pot lua în calcul și efectele de pierderi datorită interacțiilor dintre particulele care compun sistemul.

Astfel, elementele diagonale ρ_{nn} și nediagonale ρ_{mn} ale matricei densitate verifică următoarele ecuații de mișcare

$$i\hbar\left\{\frac{\partial \rho_{nn}}{\partial t} + \sum_i (\rho_{nn}w_{ni} - \rho_{ii}w_{in})\right\} = [H_0 + H_i(t), \rho_{nn}] \tag{9.50}$$

$$i\hbar\left(\frac{\partial}{\partial t} + \gamma_{mn}\right)\rho_{mn} = [H_0 + H_i(t), \rho]_{mn} \tag{9.51}$$

unde w_{ij} și γ_{mn} sînt ratele de relaxare longitudinală respectiv transversală. După cum s-a mai arătat aceste rate se mai notează și cu $\gamma_{\parallel}$ respectiv $\gamma_{\perp}$ (§7.1.3).

Dacă se consideră numai tranzițiile între stări proprii și nu se iau în considerare tranzițiile rezultate în urma fenomenelor de relaxare, în relația (9.50) ratele de relaxare longitudinale w_{ij} pot fi neglijate. Lărgimea liniei $\hbar\gamma_{mn}$ corespunzătoare tranziției între nivelele m și n este determinată de lărgimea naturală a liniei și de efectele de lărgire datorită presiunii, avînd o valoare mult mai mare decît lărgimea spectrală a radiației incidente.

Întrucît termenul de interacţie $H_i(t)$ este mult mai mic decît hamiltonianul sistemului neperturbat H_0, fiecare element de matrice al operatorului densitate ρ poate fi dezvoltat în serie de puteri ale perturbaţiei

$$\rho_{mn} = \sum_p \rho_{mn}^{(p)} \tag{9.52}$$

astfel că ecuaţia de mişcare pentru elementele diagonale şi nediagonale devine

$$i\hbar \left\{\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{mn} + (1 - \delta_{mn})\gamma_{mn}\right\} \rho_{mn}^{(p)} = [H_i'(t), \rho^{(p-1)}]_{mn} \tag{9.53}$$

unde

$$\omega_{mn} = \hbar^{-1}(E_m - E_n). \tag{9.54}$$

Considerînd cîmpul electric incident al perturbaţiei coerente de forma

$$E(r, t) = \frac{1}{2}\{E(r)e^{-i\omega t} + E(r)e^{i\omega t}\} \tag{9.55}$$

polarizarea neliniară de ordinul trei $P(3\omega)$ este dată de relaţia

$$\langle P(3\omega)\rangle = N\chi^{(3)}(3\omega)\left(\frac{E(r)}{2}\right)^3 e^{-3i\omega t} + \text{c.c.} \tag{9.56}$$

Folosind formalismul matricei densitate, valoarea polarizării neliniare de ordinul trei se mai poate calcula cu ajutorul relaţiei

$$\langle P(3\omega t)\rangle = N \sum_{mn} \rho_{mn}(3\omega t) d_{nm} \tag{9.57}$$

unde d_{nm} reprezintă operatorul momentului de dipol, iar N este numărul de atomi din unitatea de volum. Expresia susceptibilităţii neliniare de ordinul trei rezultă din identificarea relaţiilor (9.56) şi (9.57).

Termenii $\rho_{mn}^{(p)}$ care intervin în relaţia (9.52) conţin combinaţii ale frecvenţelor radiaţiei incidente şi pot fi scrişi astfel

$$\rho_{mn}^{(1)} = C_{mn}^{(1)} e^{-i\omega t} + C_{nm}^{(1)*} e^{i\omega t} \tag{9.58}$$

$$\rho_{mn}^{(2)} = C_{mn}^{(2)} e^{-i2\omega t} + C_{mn}^{(0)} + C_{nm}^{(2)*} e^{i2\omega t} \tag{9.59}$$

$$\rho_{mn}^{(3)} = C_{mn}^{(3)} e^{-i3\omega t} + C_{mn}^{(1)} e^{-i\omega t} + C_{nm}^{(1)*} e^{i\omega t} + C_{nm}^{(3)} e^{i3\omega t}. \tag{9.60}$$

Înlocuind relaţiile (9.58)—(9.60) în ecuaţia de mişcare (9.53) şi ţinînd seama că sistemul se află în momentul iniţial în stare fundamentală $|g\rangle$ care în cazul metalelor alcaline este $^2S_{1/2}$ şi că tranziţiile de dipol au

loc între stări proprii $|m\rangle$ și $|n\rangle$ cu parități opuse, pentru coeficienții dezvoltării $C^{(k)}_{mn}$ se obțin următoarele expresii [111]

$$C^{(1)}_{pg} = -\frac{E\cdot d_{pg}}{2\hbar(\omega-\omega_{pg}+i\gamma)} \tag{9.61}$$

$$C^{(1)}_{gp} = \frac{E\cdot d_{pg}}{2\hbar(\omega+\omega_{pg}+i\gamma)} \tag{9.62}$$

$$C^{(2)}_{pp} = \frac{E\cdot d_{pg}}{2\hbar\,(2\omega)}\left(C^{(1)}_{pg}-C^{(1)}_{gp}\right) \tag{9.63}$$

$$C^{(2)}_{gg} = -\sum_{p} C^{(2)}_{pp} \tag{9.64}$$

$$C^{(2)}_{pp'} = \frac{E}{2\hbar(2\omega-\omega_{pp'}+i\gamma)}\left(-d_{pg}C^{(1)}_{gp'}+d_{p'g}C^{(1)}_{pg}\right) \tag{9.65}$$

$$C^{(2)}_{sg} = -\frac{E}{2\hbar}\sum_{p}\frac{d_{ps}C^{(1)}_{pg}}{2\omega-\omega_{sg}+i\gamma} \tag{9.66}$$

$$C^{(2)}_{gs} = \frac{E}{2\hbar}\sum_{p}\frac{d_{ps}C^{(1)}_{gp}}{2\omega+\omega_{sg}+i\gamma} \tag{9.67}$$

$$C^{(2)}_{dg} = -\frac{E}{2\hbar}\sum_{p}\frac{d_{dp}C^{(1)}_{pg}}{2\omega-\omega_{dg}+i\gamma} \tag{9.68}$$

$$C^{(2)}_{gd} = \frac{E}{2\hbar}\sum_{p}\frac{d_{dp}C^{(1)}_{gp}}{2\omega+\omega_{dg}+i\gamma} \tag{9.69}$$

$$C^{(3)}_{mn} = -\frac{E}{2\hbar}\sum_{k}\frac{d_{mk}C^{(2)}_{kn}-d_{kn}C^{(2)}_{mk}}{3\omega-\omega_{mn}+i\gamma}. \tag{9.70}$$

În relația (9.70) indicii m și n sînt combinații ale perechilor de indici gp, pg, sp, pd și dp. Cu ajutorul coeficienților $C^{(3)}_{mn}$ relația (9.57) se scrie astfel

$$\langle P(3\omega t)\rangle = N\sum_{mn} d_{nm}C^{(3)}_{mn}e^{-i3\omega t} + \text{c.c.} \tag{9.71}$$

Pentru a calcula elementele de matrice ale operatorului momentului de dipol d_{nm} se consideră că stările proprii legate ale atomilor metalelor alcaline sînt descrise de vectorii ket $\left|n, l, s=\frac{1}{2}, j, m\right\rangle$, iar cîmpul electric incident este liniar polarizat de-a lungul axei Oz. Momentul electric de di-

pol astfel indus, $d_z = -er$, este un tensor de rangul unu care în cazul unei simetrii sferice se poate calcula cu ajutorul relației [113]

$$\langle n, l, s, j, m | d_z | n', l', s, j', m' \rangle = -e \langle l, s, j, m | T_0^{(1)} | l', s, j', m' \rangle \langle n, l \| r \| n' l' \rangle \tag{9.72}$$

unde :

$$\langle l, s, j, m | T_0^{(1)} | l', s, j', m' \rangle = (-1)^{j-m} \begin{pmatrix} j & 1 & j' \\ -m & 0 & m' \end{pmatrix} \times$$

$$\times \langle l, s, j \| T^{(1)} \| l', s, j' \rangle \tag{9.73}$$

$$\langle l, s, j \| T^{(1)} \| l', s, j' \rangle = (-1)^{l+s+j'+1} (2j+1)^{1/2} \cdot (2j'+1)^{1/2} \times$$

$$\times \begin{Bmatrix} j & 1 & j' \\ l' & s & l \end{Bmatrix} \cdot \langle l \| T^{(1)} \| l' \rangle \tag{9.74}$$

$$\langle l \| T^{(1)} \| l' \rangle = (-1)^l (2l+1)^{1/2} (2l'+1)^{1/2} \cdot \begin{pmatrix} l & 1 & l' \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \tag{9.75}$$

Pentru a calcula elementele de matrice din relația (9.74), se consideră că numai stările S, P și D ale metalelor alcaline contribuie la valoarea susceptibilității neliniare de ordinul trei. Contribuția stărilor cu numere cuantice mai mari ale momentului cinetic poate fi neglijată dacă se admite că la momentul inițial singurul nivel populat este nivelul fundamental $^2S_{1/2}$. În aceste condiții, valorile elementelor de matrice $\langle l, s, j \| T^{(1)} \| l', s, j' \rangle$ sînt prezentate în tabelul 9.1.

De asemenea, pentru elementele de matrice care nu se anulează în relația (9.73) se obțin următoarele valori

$$\left\langle {}^2S_{1/2}, m = \pm\frac{1}{2} \,|\, T_0^{(1)} \,|\, {}^2P_{1/2}, m = +\frac{1}{2} \right\rangle = \mp\frac{1}{3} \tag{9.76}$$

$$\left\langle {}^2S_{1/2}, m = \pm\frac{1}{2} \,|\, T_0^{(1)} \,|\, {}^2P_{3/2}, m = \pm\frac{1}{2} \right\rangle = \left(\frac{2}{9}\right)^{1/2} \tag{9.77}$$

$$\left\langle {}^2P_{1/2}, m = \pm\frac{1}{2} \,|\, T_0^{(1)} \,|\, {}^2D_{3/2}, m = \pm\frac{1}{2} \right\rangle = \left(\frac{2}{9}\right)^{1/2} \tag{8.78}$$

$$\left\langle {}^2P_{3/2}, m = \pm\frac{1}{2} \,|\, T_0^{(1)} \,|\, {}^2D_{3/2}, m = \pm\frac{1}{2} \right\rangle = \mp\frac{1}{15} \tag{9.79}$$

$$\left\langle {}^2P_{3/2}, m = \pm\frac{1}{2} \,|\, T_0^{(1)} \,|\, {}^2D_{5/2}, m = \pm\frac{1}{2} \right\rangle = \left(\frac{6}{25}\right)^{1/2}. \tag{9.80}$$

Ținînd seama de regulile de selecție care guvernează tranzițiile de dipol, elementele de matrice radiale din relația (9.72) pot fi calculate cu ajutorul „tăriei" oscilatorului (rel. 1.118), $f(n, l \to n', l+1)$, sub forma

$$|\langle n, l \| r \| n', l+1 \rangle|^2 = \frac{3(2l+1)}{2(l+1)|E_{nl} - E_{n',l+1}|}. \tag{9.81}$$

Tabelul 9.1

	$^2S_{1/2}$	$^2P_{1/2}$	$^2P_{3/2}$	$^2D_{3/2}$	$^2D_{5/2}$
$^2S_{1/2}$	0	$-\left(\frac{2}{3}\right)^{1/2}$	$-\left(\frac{4}{3}\right)^{1/2}$	0	0
$^2P_{1/2}$	$-\left(\frac{2}{3}\right)^{1/2}$	0	0	$-\left(\frac{4}{3}\right)^{1/2}$	0
$^2P_{3/2}$	$\left(\frac{4}{3}\right)^{1/2}$	0	0	$-\left(\frac{4}{15}\right)^{1/2}$	$-\left(\frac{12}{5}\right)^{1/2}$
$^2D_{3/2}$	0	$\left(\frac{4}{3}\right)^{1/2}$	$-\left(\frac{4}{15}\right)^{1/2}$	0	0
$^2D_{5/2}$	0	0	$\left(\frac{12}{5}\right)^{1/2}$	0	0

Semnul elementelor de matrice radiale $\langle n, l \| r \| n', l+1\rangle$ se calculează pe baza aproximaţiilor teoretice prezentate în lucrarea [114] şi corecţiilor aduse acestor aproximaţii care sînt prezentate în lucrarea [115]. În relaţia (9.81) valorile energiilor nivelelor E_{nl} despicate datorită cuplajului spin-orbită sînt mediate ponderat astfel

$$E_{n,p} = \frac{1}{3} E(n^2P_{1/2}) + \frac{2}{3} E(n^2P_{3/2}) \tag{9.82}$$

$$E_{n,d} = \frac{2}{5} E(n^2 D_{3/2}) + \frac{3}{5} E(n^2D_{5/2}). \tag{9.83}$$

Tăriile oscilatorilor corespunzătoare tranziţiilor între nivelele considerate mai înainte sînt calculate în lucrarea [116].

Modelul prezentat mai sus privind calculul susceptibilităţii neliniare de ordinul trei pentru metalele alcaline, cu luarea în considerare a structurii fine a nivelelor energetice, poate fi dezvoltat şi aplicat în cazul susceptibilităţii neliniare de ordinul cinci. În acest caz polarizarea de ordinul cinci se calculează cu ajutorul relaţiei

$$\langle P(5\omega t)\rangle = N \sum_{m,n} d_{nm} C_{mn}^{(5)} e^{-i5\omega t} + \text{c.c.} \tag{9.84}$$

Pe baza modelului prezentat în lucrarea [117] relaţia de calcul a susceptibilităţii neliniare de ordinul cinci $\chi^{(5)}$ pentru vaporii metalelor alcaline, ţinînd seama de structura fină a nivelelor energetice este

$$\chi^{(5)}(-5\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, \omega) = \frac{(ea_0)^6}{(\hbar c)^5} \cdot \frac{1}{2^5} \Sigma d_{ga} d_{ab} d_{bc} d_{cd} d_{de} \cdot$$

$$\cdot d_{eg} \cdot \frac{1}{[(\omega - \omega_{ag})^2 + \gamma^2]\,[(2\omega - \omega_{bg})^2 + \gamma^2]\,[(3\omega - \omega_{cg})^2 + \gamma^2]\,[(4\omega - \omega_{dg})^2 +} \times$$

$$\times \frac{}{+ \gamma^2]\,[(5\omega - \omega_{eg})^2 + \gamma^2]} \cdot \Big\{ (\omega - \omega_{ag})(2\omega - \omega_{bg})(3\omega - \omega_{cg})(4\omega - \omega_{dg}) \times$$

$$\times (5\omega - \omega_{eg}) - \gamma^2[(\omega - \omega_{ag})(2\omega - \omega_{bg}) + (4\omega - \omega_{dg})(3\omega - \omega_{eg}) + (3\omega - (\omega_{ag} + \omega_{bg}))\cdot(7\omega - (\omega_{eg} - \omega_{dg})) + (\omega - \omega_{ag})(2\omega - \omega_{bg})(3\omega - (\omega_{ag} + \omega_{bg})) + (3\omega - \omega_{cg})(4\omega - \omega_{dg})(7\omega - (\omega_{cg} + \omega_{dg}))]\} + \ldots \quad (9.85)$$

Pentru deducerea formulei susceptibilității s-au neglijat termenii care conțin ratele de relaxare γ la puteri mai mari decît doi întrucît sînt foarte mici. În relația (9.85), a_0 este prima rază Bohr, g corespunde stării fundamentale, iar $a, b, \ldots$ specifică stările excitate ale atomilor metalelor alcaline care pot să fie S, P, D, F. Întrucît în tranziții sînt implicate și stări F, relațiile (9.76)—(9.80) cu ajutorul cărora se calculează elementele de matrice ale tranzițiilor de dipol care nu se anulează, mai trebuie completate cu alte elemente de matrice corespunzătoare tranzițiilor între stările D și F care sînt date de expresiile

$$\left\langle {}^2D_{3/2}, m = \pm\frac{1}{2} \,|\, T_0^{(1)} \,|\, {}^2F_{5/2}, m = \pm\frac{1}{2} \right\rangle = \left(\frac{6}{25}\right)^{1/2} \quad (9.86)$$

$$\left\langle {}^2D_{5/2}, m = \pm\frac{1}{2} \,|\, T_0^{(1)} \,|\, {}^2F_{5/2}, m = \pm\frac{1}{2} \right\rangle = \mp\frac{1}{35} \quad (9.87)$$

$$\left\langle {}^2D_{5/2}, m = \pm\frac{1}{2} \,|\, T_0^{(1)} \,|\, {}^2F_{7/2}, m = \pm\frac{1}{2} \right\rangle = \left(\frac{12}{49}\right)^{1/2}. \quad (9.88)$$

Tranzițiile între stările D și F au fost considerate și la calculul elementelor de matrice $\langle l, s, j \,|\, T^{(1)} |\, l', s, j' \rangle$, a căror valori sînt date în tabelul 9.2

Tabelul 9.2

	${}^2S_{1/2}$	${}^2P_{1/2}$	${}^2P_{3/2}$	${}^2D_{3/2}$	${}^2D_{5/2}$	${}^2F_{5/2}$	${}^2F_{7/2}$
${}^2S_{1/2}$	0	$-\left(\frac{2}{3}\right)^{1/2}$	$-\left(\frac{4}{3}\right)^{1/2}$	0	0	0	0
${}^2P_{1/2}$	$-\left(\frac{2}{3}\right)^{1/2}$	0	0	$-\left(\frac{4}{3}\right)^{1/2}$	0	0	0
${}^2P_{3/2}$	$\left(\frac{4}{3}\right)^{1/2}$	0	0	$-\left(\frac{4}{15}\right)^{1/2}$	$-\left(\frac{12}{5}\right)^{1/2}$	0	0
${}^2D_{3/2}$	0	$\left(\frac{4}{3}\right)^{1/2}$	$-\left(\frac{4}{15}\right)^{1/2}$	0	0	$-\left(\frac{12}{5}\right)^{1/2}$	0
${}^2D_{5/2}$	0	0	$\left(\frac{12}{5}\right)^{1/2}$	0	0	$-\left(\frac{6}{35}\right)^{1/2}$	$-\left(\frac{24}{7}\right)^{1/2}$
${}^2F_{5/2}$	0	0	0	$\left(\frac{12}{5}\right)^{1/2}$	$-\left(\frac{6}{35}\right)^{1/2}$	0	0
${}^2F_{7/2}$	0	0	0	0	$\left(\frac{27}{4}\right)^{1/2}$	0	0

Modelele prezentate pot fi extinse la calculul susceptibilităților neliniare de ordine superioare, în vederea obținerii unor expresii mai exacte decît cele date de relația (9.25) și care să țină seama de structura fină a nivelelor energetice implicate în tranziții. Luarea în considerare a structurii fine a nivelelor și a pierderilor joacă un rol important în cazul fenomenelor care au loc la rezonanță.

9.3. Evaluarea numerică a susceptibilităților neliniare de diferite ordine

Valorile numerice ale susceptibilităților neliniare de diferite ordine prezintă interes atît din punct de vedere teoretic cît și experimental, pentru că sînt o măsură a diferitelor efecte neliniare care apar în urma interacției dintre radiația laser și mediul neliniar considerat. Funcție de fenomenele care se studiază, unul din criteriile de alegere a mediilor neliniare este determinat de valoarea cît mai mare a susceptibilității neliniare corespunzătoare. De asemenea, cunoașterea exactă a valorilor susceptibilităților neliniare de diferite ordine joacă un rol important în rezolvarea ecuațiilor cuplate de amplitudine care descriu diferite fenomene ca : generare de armonici, mixare optică neliniară, absorbție și emisie multifotonică, împrăștierea luminii prin efect Raman stimulat ș.a., în vederea îmbunătățirii condițiilor de interacție.

Evaluarea exactă a susceptibilităților neliniare de diferite ordine presupune utilizarea calculatorului, din cauza numărului mare de stări legate sau libere care sînt implicate în tranzițiile de dipol. În formula generală de calcul a susceptibilităților neliniare de diferite ordine (9.25), frecvențele ω_{ab_n} corespunzătoare tranzițiilor dintre nivelele energetice ale atomilor care constituie mediul neliniar, pot fi calculate din tabelele prezentate în lucrarea [118]. Funcție de unitățile în care sînt exprimate frecvențele ω_{ab_n} respectiv elementele de matrice ale tranzițiilor de dipol, susceptibilitatea poate fi exprimată în SI sau în alte sisteme de unități derivate, de exemplu, c.g.s./e.s.u, care de asemenea sînt deseori întrebuințate în literatura de specialitate. Relațiile de trecere de la un sistem de unități la altul sînt prezentate în lucrarea [102]. Elementele de matrice radiale ale tranzițiilor de dipol $\langle n, l \,\|r\|\, n', l+1\rangle$, între stările $ns \to mp$, $np \to \to md$, calculate cu ajutorul relației (9.71) pentru vaporii metalelor alcaline sînt prezentate în lucrările [111, 117].

Inițial, evaluările susceptibilităților neliniare de ordinul trei au fost făcute pentru vaporii metalelor alcaline luîndu-se în considerare numai primele patru nivele energetice s, p, d, f. Valorile teoretice ale susceptibilităților astfel calculate diferă de valorile măsurate experimental cu aproximativ 15% [112]. Aproximația teoretică considerată este destul de bună dacă se ține seama de faptul că în diagrama nivelelor energetice, a sodiului, de exemplu, prezentată în fig. 9.3, frecvențele fundamentalei respectiv armonicii generate de ordinul trei, corespunzătoare unor laseri de mare putere cu $\lambda = 1{,}06$ µm și $\lambda = 0{,}6943$ µm, se află sub, respectiv, puțin peste nivelul de ionizare, rezultînd astfel o absorbție slabă în domeniul continuu al spectrului.

La rezonanţă, susceptibilitatea neliniară de ordinul trei, calculată cu ajutorul relaţiei (9.29) devine infinită. Astfel, dependenţa de lungimea de undă a susceptibilităţii neliniare de ordinul trei, pe atom, a sodiului, de

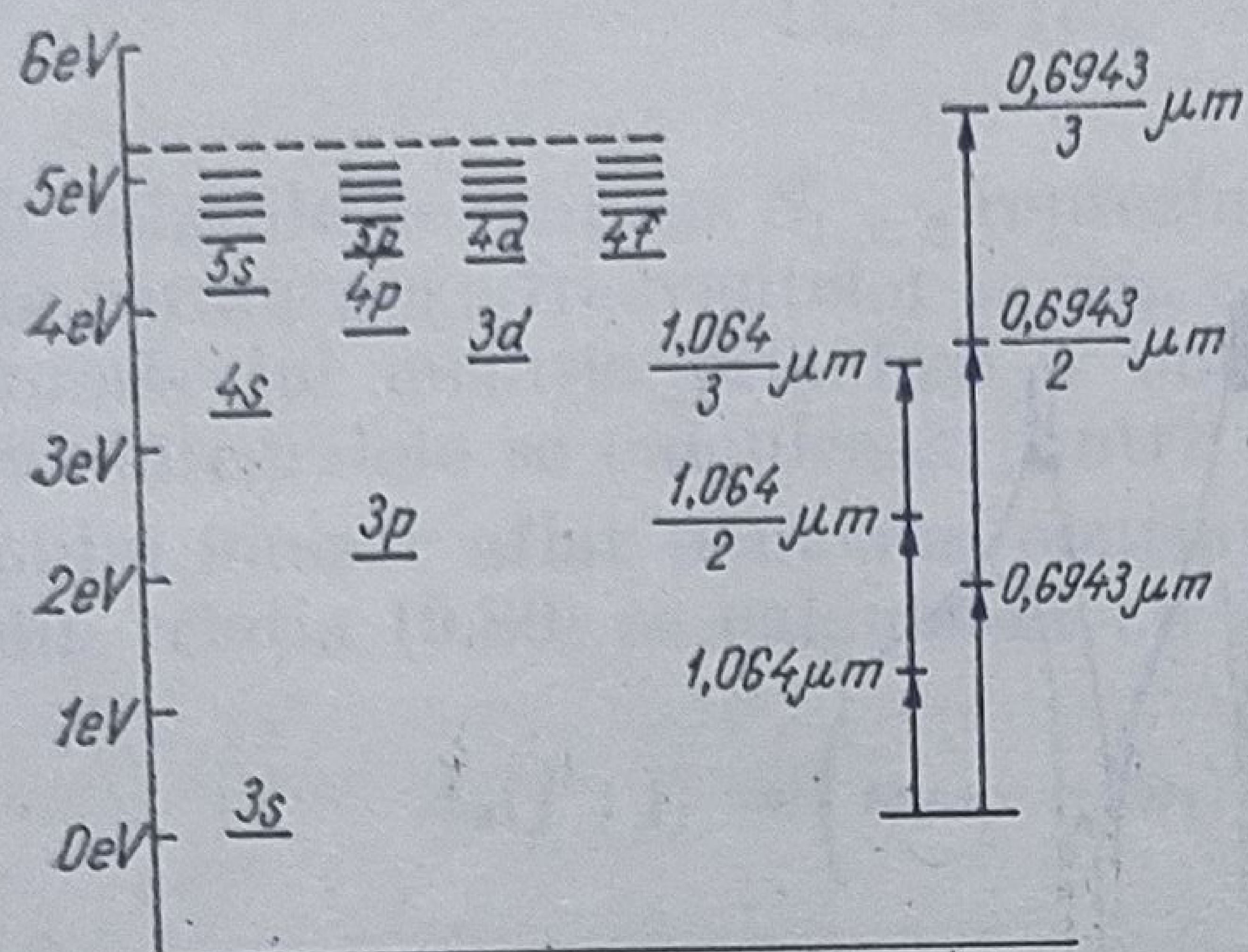


Fig. 9.3.

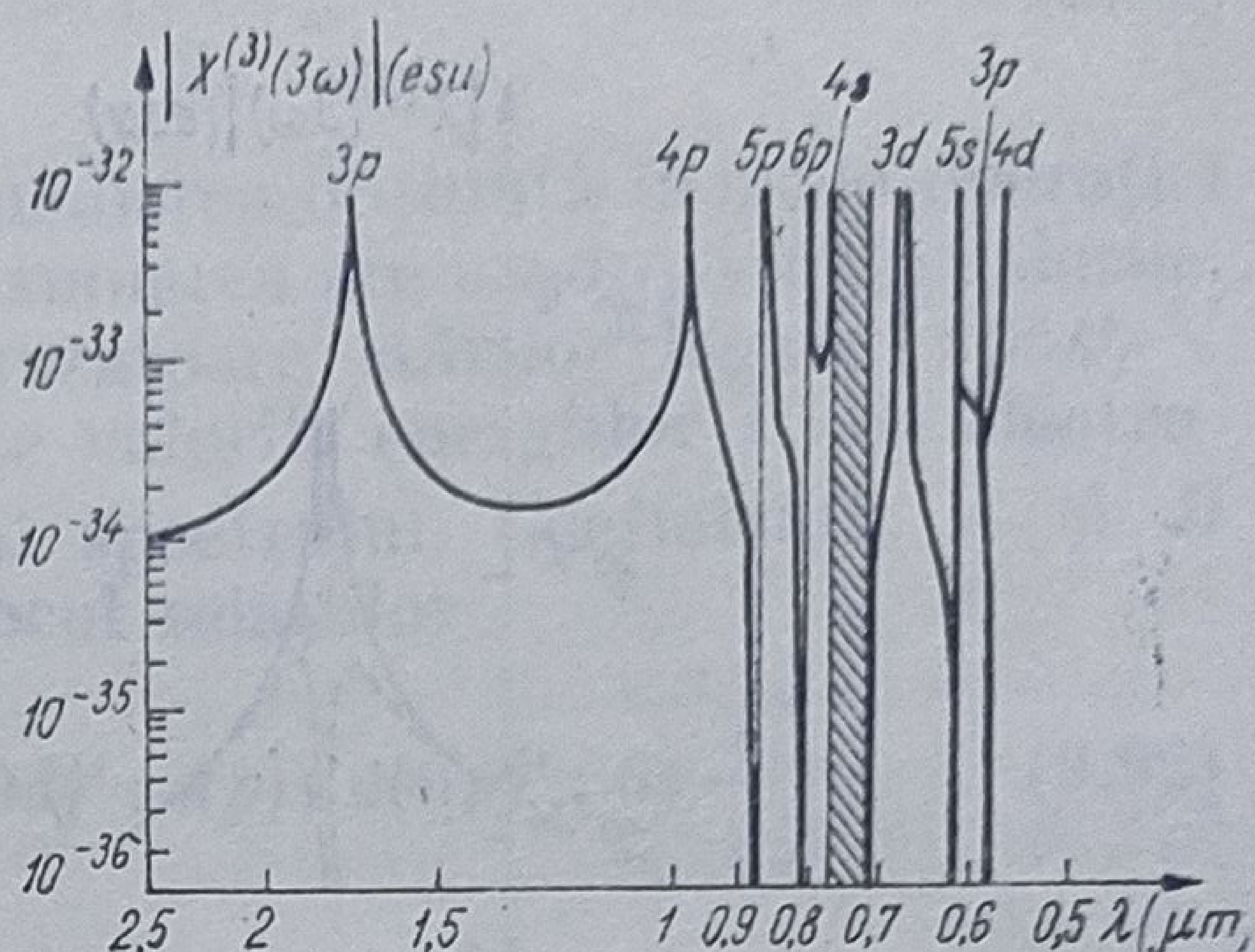


Fig. 9.4.

exemplu (în unităţi esu), prezentată în fig. 9.4, evidenţiază existenţa unor puncte în care aceasta se anulează şi a unor domenii spectrale în care relaţia de calcul (9.29) nu mai este aplicabilă pentru că nu s-a ţinut seama de structura fină a nivelelor energetice şi de pierderi [112].

Se observă, de asemenea, că lungimea de undă a laserului cu rubin ($\lambda = 0{,}6934\ \mu$m) este apropiată de lungimea de undă corespunzătoare tranziţiei $3s - 3d$ care implică doi fotoni, iar susceptibilitatea corespunzătoare ia valori foarte mari. Rezonanţe cu unul sau doi fotoni mai pot fi obţinute şi cu alte nivele s, p sau d.

Luînd în considerare structura fină a nivelelor energetice implicate în tranziţii, pierderile şi totalitatea stărilor legate $s, p, \ldots$, susceptibilitatea neliniară de ordinul trei poate fi calculată mult mai precis cu ajutorul relaţiilor (9.56)—(9.57). În cazul sodiului, partea reală a susceptibilităţii neliniare de ordinul trei funcţie de lungimea de undă, într-un domeniu spectral îngust aflat în vecinătatea fundamentalei şi a primelor patru armonici a, b, c, d, ale laserilor cu neodim şi cu iod, este prezentată în fig. 9.5 [111], iar în fig. 9.6 aceleaşi curbe sînt prezentate, la rezonanţă, pentru

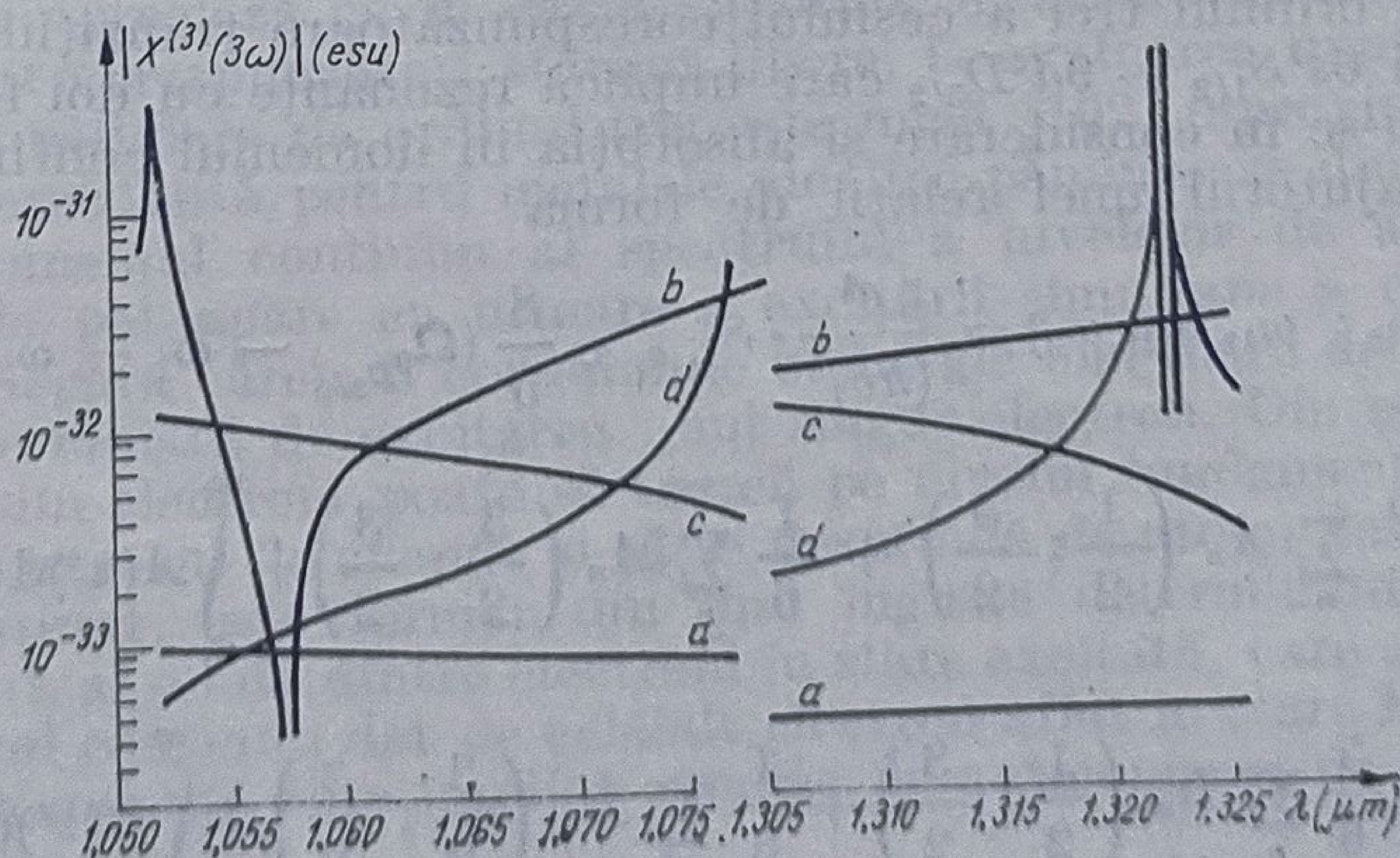


Fig. 9.5.

$\gamma = 0,1\ cm^{-1}$ (curba continuă) şi $\gamma = 1\ cm^{-1}$ (curba punctată). Comparînd valorile susceptibilităţii calculate cu ajutorul relaţiilor (9.29) (9.56) şi (9.57), cu valoarea măsurată experimental se constată că valoarea susceptibilităţii calculată din relaţiile (9.56) şi (9.57), care ţine seama de

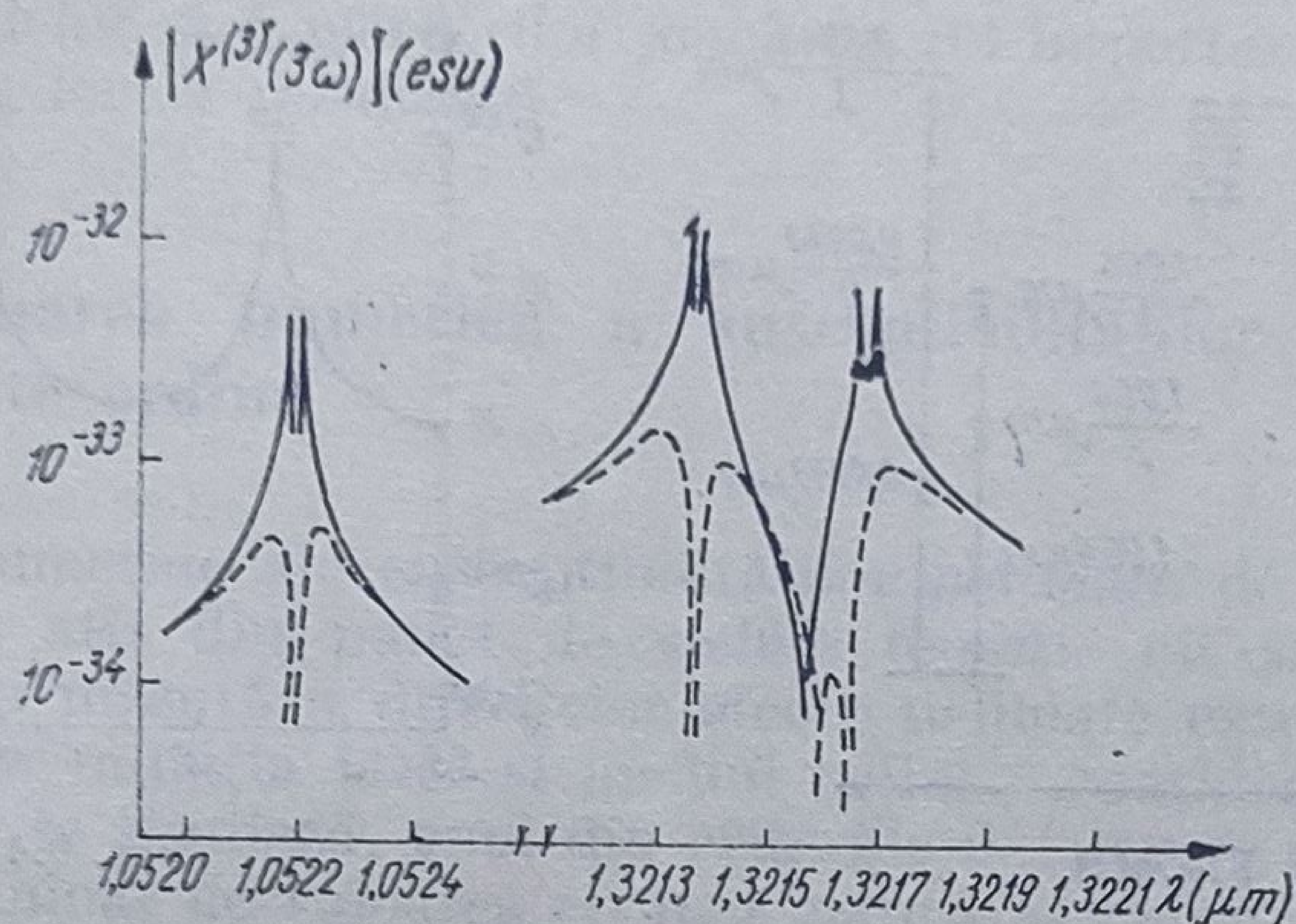


Fig. 9.6.

structura fină a nivelelor şi de pierderi concordă mult mai bine cu valoarea determinată experimental. Astfel, în cazul rubidiului, susceptibilitatea neliniară de ordinul trei pe atom, măsurată pentru lungimea de undă $\lambda = 1,06\ \mu m$ este $1,4 \cdot 10^{-32}$ e.s.u. [112], în timp ce valorile calculate cu ajutorul relaţiilor (9.29), (9.56) şi (9.57) sînt $6,15 \times 10^{-33}$ e.s.u. [112] respectiv $1,072 \cdot 10^{-32}$ e.s.u. [111].

La rezonanţă, calculul susceptibilităţii se complică şi mai mult pentru că trebuie luate în considerare atît lărgimile liniilor diferitelor tranziţii implicate în procesul studiat cît şi lărgimile liniilor corespunzătoare radiaţiilor incidente şi generate. Astfel, pe baza fenomenului de absorbţie rezonantă a doi fotoni în cesiu, care corespunde tranziţiei $6s\ ^2S_{1/2} \to 9d\ ^2D_{3/2}$, susceptibilitatea calculată cu o precizie de 20% este de $3 \cdot 10^{-30}$ e.s.u./atom [120], iar cea măsurată experimental este de $\sim 10^{-30}$ e.s.u. [120]. În acest caz atît valoarea calculată a susceptibilităţii, cît şi cea măsurată experimental sînt cu două ordine de mărime mai mari decît valoarea susceptibilităţii $\chi^{(3)}_{Cs(\text{atom})} \sim 10^{-32}$ [112] e.s.u. calculată în absenţa fenomenului de rezonanţă. În lucrarea [120] calculul susceptibilităţii neliniare de ordinul trei a cesiului corespunzătoare tranziţiilor $6s^2S_{1/2} \to \to 9d^2D_{3/2}$ şi $6s^2S_{1/2} \to 9d^2D_{5/2}$ care implică rezonanţe cu doi fotoni, a fost făcut luîndu-se în considerare şi absorbţia în domeniul continuu al spectrului, cu ajutorul unei relaţii de forma

$$\chi^{(3)}(\omega_\sigma;\ \omega_1, \omega_2, \omega_3) = \frac{e^4}{(\hbar c)^3} \cdot S_{1,\,2,\,3,}\ \frac{8}{5}\,(\Omega_{9_{D_{3/2}}} - \omega_1 - \omega_2)^{-1} \times$$

$$\times \left[\frac{5}{6}\sum_n A_n\left(\frac{1}{2};\ \frac{3}{2}\right) + \frac{1}{6}\sum_n A_n\left(\frac{3}{2};\ \frac{3}{2}\right) + \int_0^\infty A(\varepsilon')\mathrm{d}\varepsilon'\right] \times$$

$$\times \left[\frac{5}{6}\sum_n B_{n'}\left(\frac{1}{2};\ \frac{3}{2}\right) + \frac{1}{6}\sum_{n'} B_{n'}\left(\frac{3}{2};\ \frac{3}{2}\right) + \int_0^\infty B(\varepsilon')\mathrm{d}\varepsilon'\right] \qquad (9.89)$$

unde

$$\omega_\sigma = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 \tag{9.90}$$

$$\Omega_{mg} = (\omega_m - \omega_g) - i\frac{1}{2}\gamma_m. \tag{9.91}$$

În relațiile de mai sus $S_{1,2,3}$ reprezintă medierea obținută în urma operației de permutare a frecvențelor ω_1, ω_2, ω_3, însumarea are loc după toate valorile, numărului cuantic principal n corespunzătoare stărilor legate $|np^2P_{j'}\rangle$- iar integralele se calculează pentru toate valorile energiilor ε' ale electro nului ionizat aflat domeniul continuu al spectrului. Coeficienții A și B din relația (9.89) se calculează cu ajutorul relațiilor

$$A_n(j';j) = \left(\omega_{nP_{j'}} - \omega_1\right)^{-1}\sigma(9dj';npj)\,\sigma\left(npj';6s\frac{1}{2}\right) \tag{9.92}$$

$$B_n(j';j) = [(\omega_{nP_{j'}} - \omega_\sigma)^{-1} + (\omega_{nP_{j'}} + \omega_3)^{-1}]\times$$

$$\times\,\sigma\left(6s\frac{1}{2};npj\right)\sigma\left(npj';9dj\right) \tag{9.93}$$

$$A(\varepsilon') = (I_{6S} + \varepsilon - \omega_1)^{-1}\sigma(9d;\ \varepsilon_p')\sigma(\varepsilon_p';\quad 6s) \tag{9.94}$$

$$B(\varepsilon') = [(I_{6S} + \varepsilon' - \omega_\sigma)^{-1} + (I_{6S} + \varepsilon' + \omega_3)^{-1}]\times$$

$$\times\ \sigma(6s;\ \varepsilon_p')\ \sigma(\varepsilon_p';\ 9d). \tag{9.95}$$

În relațiile (9.92) — (9.95) $\omega_{nP_{j'}}$ reprezintă frecvența tranziției $np^2P_j \to 6s^2S_{1/2}$, I_{6S} este potențialul de ionizare al cesiului corespunzător nivelului fundamental $6s^2S_{1/2}$ [118], iar $\sigma(n', l+1, j';\ n\,l\,j)$ sînt elementele de matrice reduse ale tranzițiilor de dipol dintre două stări legate care pot fi calculate cu ajutorul relației (9.81). Elementele de matrice $\sigma\ (6s;\ \varepsilon_p')$ și $\sigma(9d;\ \varepsilon_p')$, care corespund tranzițiilor din stările legate în cele libere se calculează cu ajutorul tabelelor prezentate în lucrarea [121]. Relațiile (9.93)—(9.95) pun în evidență dependența de numărul cuantic intern j, a elementelor de matrice ale tranzițiilor de dipol, care în cazul cesiului joacă un rol foarte important.

Deși se apreciază că în cazul vaporilor metalelor alcaline contribuția termenilor corespunzători stărilor libere, la evaluarea numerică a susceptibilității neliniare de ordinul trei este mică [102] (aproximativ 20%), ea devine importantă pentru metalele alcalino-pămîntoase din cauza prezenței în domeniul continuu al spectrului a nivelelor de autoionizare. Aceste nivele pot apare ca urmare a excitării simultane a doi electroni într-o stare legată căreia îi corespunde o energie mai mare decît limita de ionizare determinată de excitarea unui singur electron. Din această nouă stare, unul din electroni poate să treacă pe nivelul fundamental, iar celălalt să preia excesul de energie și să se desprindă de atom, devenind liber. Spectrul obținut, este format din linii înguste determinate de timpul scurt de viață al unuia dintre electroni în stare excitată, care se suprapune peste spectrul continuu dat de celălalt electron aflat în stare liberă. Fenomenele de rezonanță care implică procese de autoionizare de tipul

$$2\omega_1 + \omega_2 = \omega_{UV} \tag{9.96}$$

pot conduce la o creştere substanţială a susceptibilităţii neliniare de ordinul trei.

Calculul susceptibilităţii neliniare de ordinul trei cu luarea în considerare a nivelelor de autoionizare se bazează pe teoria elaborată de Fano [123]. Considerînd că fenomenul de rezonanţă are loc în urma absorbţiei a doi fotoni de frecvenţă $2\omega_1 \simeq \Omega_{j'g}$ (fig. 9.7) pe baza modelului prezentat în lucrările [124, 125] susceptibilitatea neliniară de ordinul trei corespunzătoare procesului descris de relaţia (9.96) se poate scrie sub forma

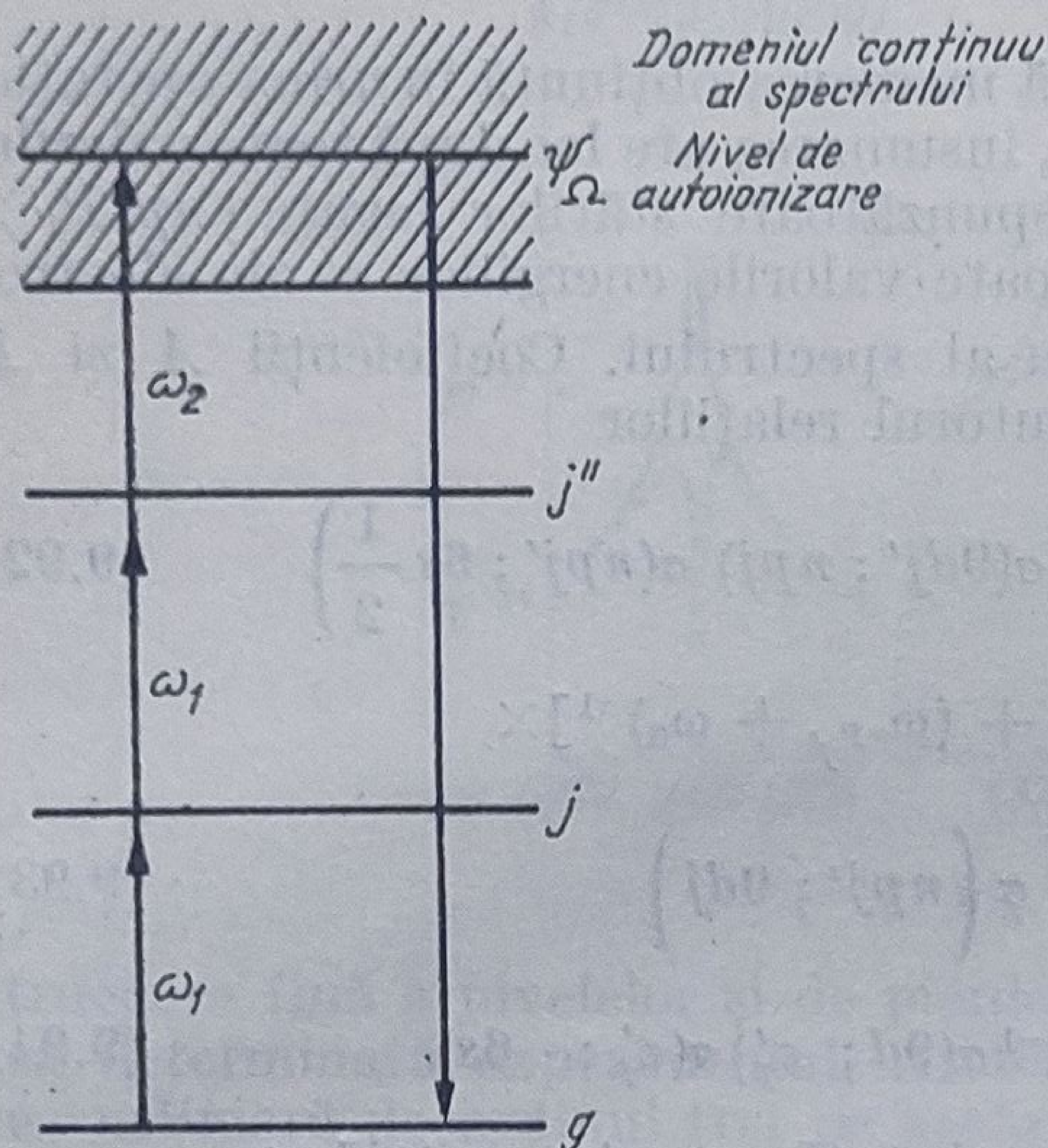


Fig. 9.7.

$$\chi^{(3)}(-\omega_{UV};\ \omega_1, \omega_1, \omega_2) = \frac{n_0}{3\hbar^3\varepsilon_0} \times$$

$$\times \frac{d_{j'j}d_{jg}}{(\Omega_{j'g} - 2\omega_1 - i\gamma_{j'g})(\Omega_{jg} - \omega_1 - 2\gamma_{jg})} \times$$

$$\times \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d_{g\Psi_\Omega} d_{\Psi_\Omega j'}\, d\omega}{(\omega - \omega_{UV} - i\gamma(\omega))} \tag{9.97}$$

unde

$$d_{g\Psi_\Omega} = d_{g\Psi^0_\Omega}(q_g \sin\Delta - \cos\Delta) \tag{9.98}$$

$$d_{\Psi_\Omega j'} = d_{\Psi^0_\Omega j'}(q_{j'} \sin\Delta - \cos\Delta) \tag{9.99}$$

reprezintă elementele de matrice corespunzătoare tranziţiilor de dipol între starea fundamentală g şi starea continuă neperturbată ψ^0_Ω, q este un parametru adimensional care determină forma liniei, iar

$$\Delta = -\,\text{arc tan}\,(1/\varepsilon). \tag{9.100}$$

În relaţia (9.100)

$$\varepsilon = (\omega - \Omega)/(\gamma/2) \tag{9.101}$$

este dezacordul frecvenţei normat.

9.4. Proprietăţile tensoriale ale susceptibilităţii

Întrucît susceptibilitatea leagă două mărimi fizice, polarizarea şi cîmpul electric, a căror semnificaţie este independentă de sistemul de coordonate în care sînt reprezentate, trebuie ca aceasta să se transforme într-un anumit fel pentru a menţine relaţia amintită, adică ea are proprietăţi tensoriale.

Într-un sistem de coordonate cartezian, tensorul susceptibilitate de ordinul doi are nouă componente dintre care numai șase sînt independente din cauza proprietății de simetrie

$$\chi_{\alpha\beta}(\omega) = \chi_{\beta\alpha}(\omega) \quad (9.102)$$

și poate fi scris sub forma

$$\begin{pmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & \chi_{xz} \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} & \chi_{yz} \\ \chi_{zx} & \chi_{zy} & \chi_{zz} \end{pmatrix}. \quad (9.103)$$

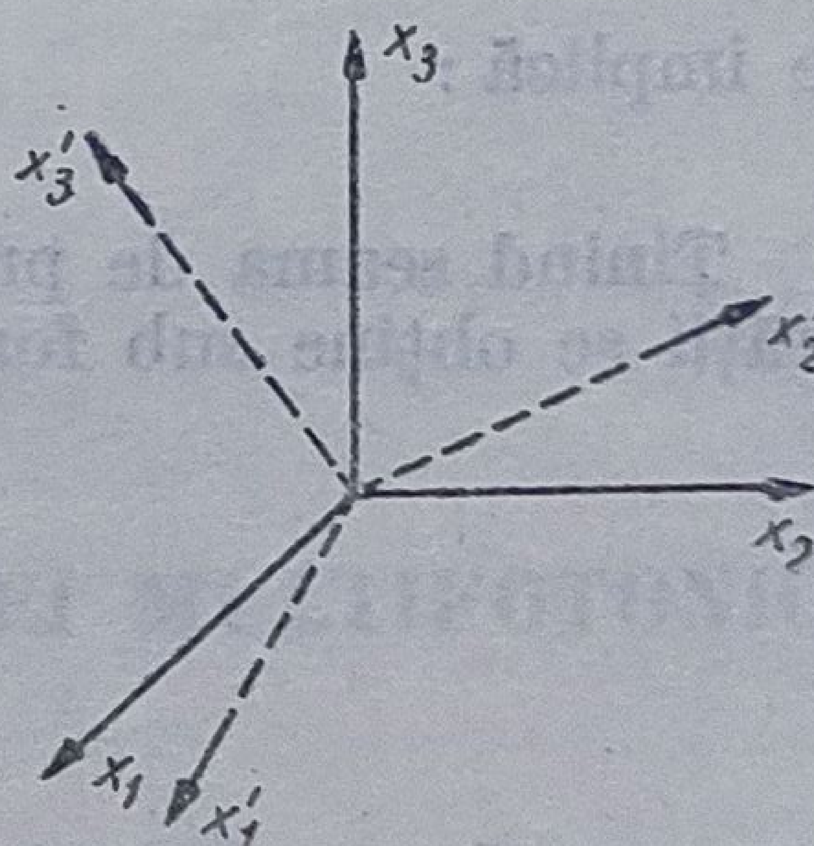
Proprietățile de transformare ale tensorului susceptibilitate sub acțiunea operațiilor de rotație a sistemului de coordonate sînt legate de proprietățile de simetrie ale mediului care la rîndul lor determină forma tensorului susceptibilitate de ordinul doi. Astfel, dacă se consideră un mediu pentru care din punct de vedere al orientărilor, cîmpul aplicat și polarizarea indusă rămîn tot timpul paralele, elementele nediagonale ale tensorului susceptibilitate sînt nule. În plus, dacă mărimea polarizării induse nu depinde de orientarea mediului, elementelor diagonale ale susceptibilității sînt egale.

Trecerea unui sistem de axe reciproc perpendiculare dintr-o poziție în alta $\{x_1, x_2, x_3\} \rightarrow \{x'_1, x'_2, x'_3\}$ sub acțiunea operației de rotație (fig. 9.8) cu un anumit unghi este descrisă de următoarele ecuații

$$x'_\alpha = a_{\alpha\beta} x_\beta \quad (9.104)$$

unde $a_{\alpha\beta}$ sînt cosinușii unghiurilor între noile axe x'_α și cele vechi x_β, care determină matricea transformării

$$A = \begin{pmatrix} a_{xx} & a_{xy} & a_{xz} \\ a_{yx} & a_{yy} & a_{yz} \\ a_{zx} & a_{zy} & a_{zz} \end{pmatrix}, \quad (9.105)$$



Fid. 9.8

Ținînd seama de expresia polarizării în cele două sisteme de coordonate

$$P_\alpha = \varepsilon_0 \chi_{\alpha\beta} E_\beta \text{ și } P'_\alpha = \varepsilon_0 \chi'_{\alpha\delta} E'_\delta \quad (9.106)$$

și de relațiile de transformare ale coordonatelor (9.104) se poate obține expresia susceptibilității în noul sistem de coordonate sub forma

$$\chi_{\alpha\beta} = a_{\alpha\beta} \chi_{\beta\gamma} a_{\gamma\delta}. \quad (9.107)$$

Cu ajutorul matricei transformării A, expresia matricei corespunzătoare susceptibilității în noul sistem de coordonate $\tilde{\chi}'$ devine

$$\tilde{\chi}' = A \tilde{\chi} A^{-1} \quad (9.108)$$

unde A^{-1} reprezintă inversa matricei A care verifică relația

$$AA^{-1} = A^{-1}A = I, \quad (9.109)$$

I fiind matricea unitate. Pentru ca valoarea susceptibilității să fie aceeași în cele două sisteme de coordonate

$$\tilde{\chi}' = \tilde{\chi} \quad (9.110)$$

trebuie îndeplinită următoarea condiţie

$$[A, \tilde{\chi}] = 0. \tag{9.111}$$

Cu ajutorul relaţiei (9.111) se poate determina forma matricei susceptibilităţii ale cărei proprietăţi de simetrie sînt determinate de proprietăţile de simetrie ale mediului. Astfel, în cazul rotaţiei sistemului de axe $x_1 x_2 x_3$ cu un unghi $\frac{\pi}{2}$ în jurul axei x_3 matricea transformării este

$$A = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \tag{9.112}$$

Forma tensorului susceptibilitate se poate obţine cu ajutorul relaţiei (9.111), care în cazul operaţiei de rotaţie cu un unghi $\frac{\pi}{2}$ devine

$$\begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & \chi_{xz} \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} & \chi_{yz} \\ \chi_{zx} & \chi_{zy} & \chi_{zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & \chi_{xz} \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} & \chi_{yz} \\ \chi_{zx} & \chi_{zy} & \chi_{zx} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \tag{9.113}$$

În urma operaţiei de indentificare se obţin relaţiile

$$-\chi_{xy} = \chi_{xy} \tag{9.114}$$

$$-\chi_{yy} = -\chi_{xx} \tag{9.115}$$

care implică:

$$\chi_{xy} = 0 \text{ şi } \chi_{xx} = \chi_{yy}. \tag{9.116}$$

Ţinînd seama de proprietatea de simetrie (9.102) tensorul susceptibilităţii se obţine sub forma

$$\chi = \begin{pmatrix} \chi_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{zz} \end{pmatrix} \tag{9.117}$$

şi corespunde de exemplu, unui cristal de KDP care are o simetrie tetragonală.

Proprietăţile fizice ale unui cristal oarecare sînt determinate de elementele sale de simetrie cărora le corespund anumite operaţii de simetrie [108]. Astfel:

— centrului de simetrie i, îi corespunde operaţia de simetrie I, care constă în schimbarea semnului tuturor coordonatelor atomilor (moleculelor) care formează cristalul;

— planului de simetrie σ, îi corespunde operaţia de reflexie Σ, care schimbă semnul unei singure coordonate;

— axei proprii de rotaţie de ordinul n, C_n, îi corespunde operaţia de rotaţie C_n^m care constă în rotaţia cristalului cu un unghi $\frac{2\pi}{n}$ în jurul axei respective;

— axei improprii de rotaţie de ordinul n, S_n, îi corespunde operaţia de rotaţie cu un unghi $\frac{2\pi}{n}$ urmată de reflexia într-un plan perpendicular pe axa respectivă, S_n^m.

Combinaţiile posibile ale acestor elemente de simetrie determină 32 de grupuri punctuale care la rîndul lor definesc 32 de clase cristalografice corespunzătoare grupurilor punctuale de simetrie al cristalului. Cele 32 de clase cristalografice sînt grupate în şapte sisteme cristalografice : triclinic, monoclinic, ortorombic, tetragonal, trigonal, hexagonal şi cubic, prezentate în lucrarea [108]. Fiecărei clase îi corespunde o anumită notaţie care constă dintr-o succesiune de numere şi litere m. Numerele reprezintă axele de rotaţie de ordin n, bara de deasupra numărului (dacă există) indică o operaţie de inversie, iar litera m defineşte un plan de reflexie. Cele mai des întîlnite notaţii sînt :

— axă de rotaţie : x ;

— axă de rotaţie urmată de inversie : $\bar{x}$

— axă de rotaţie şi plan de simetrie perpendiculară pe axă : x/m ;

— axa de rotaţie şi plane de simetrie paralele cu axa : xm ;

— axa de rotaţie, plan de simetrie normal pe axă şi alte plane de simetrie paralele cu axa : x/mm ;

— axa de rotaţie, plan de simetrie normal pe axă, plane de simetrie paralele cu axa şi plane de simetrie paralele cu axa şi care fac un unghi de 45° cu planele de simetrie paralele cu axa : $x/mm\ m$.

Pe baza celor discutate mai sus, în lucrarea, [108] sînt prezentate formele tensorului susceptibilitate de diferite ordine pentru cele şapte sisteme cristalografice.

10. TEORIA ABSORBŢIEI ŞI EMISIEI MULTIFOTONICE ÎN ATOMI

10.1. Probabilitatea absorbţiei multifotonice în atomi

Studiul proceselor multifotonice este determinat de posibilitatea obţinerii unor informaţii mai bogate privind proprietăţile materialelor, cuplajului între diferite stări care nu sînt rezultate în urma unor tranziţii de dipol electric, studiul efectelor neliniare, generarea de armonici optice şi altele.

Pentru a se calcula probabilitatea şi secţiunea eficace a tranziţiilor multifotonice care determină tăria şi condiţiile de apariţie a acestor procese,

se folosește teoria perturbațiilor (anexa 3) aplicată ecuației de mișcare pentru matricea densitate.

Hamiltonianul total H, este format din hamiltonianul sistemului neperturbat H_0 și un termen perturbativ H' considerat mult mai mic decît H_0, care caracterizerză interacția sistemului cu radiația laser

$$H = H_0 + \lambda H' \tag{10.1}$$

unde λ este un parametru.

Fiecare element de matrice al operatorului densitate poate fi dezvoltat în serie de puteri ale parametrului λ, puterea lui λ indicînd ordinul perturbației [12]

$$\rho_{ij} = \sum_p \lambda^p \rho_{ij}^{(p)}. \tag{10.2}$$

Probabilitatea de tranziție w este determinată de probabilitatea pe unitatea de timp a tranziției dintr-o stare proprie în alta rezultată în urma tranzițiilor induse. Deci, considerînd că la momentul inițial $t = 0$, sistemul se află în starea $|1\rangle$, adică

$$\rho_{ij}(t = 0) = \delta_{i1}\delta_{j1} \tag{10.3}$$

probabilitatea de tranziție din starea $|1\rangle$ în starea $|k\rangle$ este

$$w = \overline{\frac{\partial \rho_{kk}}{\partial t}} \tag{10.4}$$

unde bara de deasupra indică medierea pe o perioadă corespunzătoare frecvenței perturbației, ea fiind necesară în cazul studiului evoluției populației în intervale de timp mai mari decît perioada perturbației.

Luînd în considerare numai tranzițiile induse de radiația de pompaj și neglijînd pe cele rezultate în urma proceselor de relaxare, ecuațiile de mișcare pentru elementele de matrice diagonale, respectiv nediagonale ale operatorului densitate sînt

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}^{(p)}}{\partial t} = [H', \rho^{(p-1)}]_{jj} \tag{10.5}$$

$$i\hbar \left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{ij} + \frac{1}{\tau_{ij}}\right) \rho_{ij}^{(p)} = [H', \rho^{(p-1)}]_{ij}; \quad i \neq j. \tag{10.6}$$

Pentru perturbația de ordin zero, cu condiția inițială (10.3) soluția ecuațiilor

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}^{(0)}}{\partial t} = 0 \tag{10.7}$$

$$i\hbar \left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{ij} + \frac{1}{\tau_{ij}}\right) \rho_{ij}^{(0)} = 0; \quad i \neq j \tag{10.8}$$

este

$$\rho_{ij}^{(0)} = \delta_{i1}\delta_{j1}. \tag{10.9}$$

Ţinînd seama de relaţiile (10.5) şi (10.6), soluţia ecuaţiilor corespunzătoare perturbaţiei de ordinul întîi

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}^{(1)}}{\partial t} = \sum_k (H'_{jk}\rho_{kj}^{(0)} - \rho_{jk}^{(0)} H'_{kj}) \tag{10.10}$$

$$i\hbar\left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{ij} + \frac{1}{\tau_{ij}}\right)\rho_{ij}^{(1)} = \sum_k (H'_{ik}\rho_{kj}^{(0)} - \rho_{ik}^{(0)} H'_{kj}) \tag{10.11}$$

pentru o perturbaţie sinusoidală

$$H' = \frac{\tilde{H}'}{2}(e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) \tag{10.12}$$

corespunde unei stări staţionare şi are forma

$$\rho_{i1}^{(1)} = \frac{\tilde{H}'_{i1} e^{i\omega t}}{2i\hbar\left(i\omega + i\omega_{i1} + \frac{1}{\tau_{i1}}\right)} + \frac{\tilde{H}'_{i1} e^{-i\omega t}}{2i\hbar\left(-i\omega + i\omega_{i1} + \frac{1}{\tau_{i1}}\right)}. \tag{10.13}$$

Înlocuind expresia lui $\rho_{i1}^{(1)}$ în relaţia (10.5) şi (10.6) se obţine ecuaţia de mişcare pentru elementele de matrice diagonale de ordinul 2, $\rho_{jj}^{(2)}$

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}^{(2)}}{\partial t} = \left[\frac{|\tilde{H}'_{j1}|^2}{4i\hbar\left(-i\omega - i\omega_{j1} + \frac{1}{\tau_{j1}}\right)} - \frac{|\tilde{H}'_{j1}|^2}{4i\hbar\left(i\omega - i\omega_{j1} - \frac{1}{\tau_{j1}}\right)} \right] +$$

$$+ \text{c.c.} + \text{termeni care depind de } e^{\pm 2i\omega t}. \tag{10.14}$$

În urma operaţiei de mediere, relaţia (10.14) devine

$$i\hbar \frac{\overline{\partial \rho_{jj}^{(2)}}}{\partial t} = \frac{i|\tilde{H}'_{j1}|^2}{2\hbar\,\tau_{j1}} \left[\frac{1}{(\omega - \omega_{j1})^2 + \frac{1}{\tau_{j1}^2}} + \frac{1}{(\omega + \omega_{j1})^2 + \frac{1}{\tau_{j1}^2}} \right]. \tag{10.15}$$

Cînd $\omega \simeq \omega_{j1}$, primul termen al relaţiei (10.15) creşte foarte mult, obţinîndu-se fenomenul de rezonanţă care implică absorbţia unui singur foton. În acest caz probabilitatea de absorbţie a unui singur foton $w_{(1)}$ este dată de

$$w_{(1)} = \frac{\overline{\partial \rho_{jj}^{(2)}}}{\partial t} = \frac{|\tilde{H}'_{j1}|^2}{2\hbar^2}\pi\, g_L(\omega) \tag{10.16}$$

unde

$$g_L(\omega) = \frac{1}{\pi} \cdot \frac{1/T_2}{(\omega_{j1} - \omega)^2 + \left(\frac{1}{T_2}\right)^2} \tag{10.17}$$

reprezintă funcţia de formă a liniei spectrale a lui Lorentz care determină forma liniei lărgite omogen (cap. 1).

În cazul unui mediu izotrop

$$|\tilde{H}'_{21}|^2 = \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3}|\mathbf{E}|^2 \tag{10.18}$$

iar probabilitatea tranziției de dipol dintre două nivele este dată de relația

$$w_{(1)} = \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2 |\mathbf{E}|^2}{6\hbar^2} \pi g_L(\omega). \tag{10.19}$$

Dacă liniile sînt lărgite neomogen prin efect Doppler, în expresia probabilității (10.16) factorul Lorentz care determină forma liniei trebuie înlocuit cu unul de tip Gauss

$$g_G(\omega) = \frac{[(4/\pi)\ln 2]^{1/2}}{\Delta \omega_G} \exp\left[-4(\ln 2)\frac{(\omega_{j1} - \omega)^2}{(\Delta\omega_G)^2}\right] \tag{10.20}$$

unde ω_{j1} reprezintă frecvențele de tranziție ale atomului, iar $\Delta\omega_G$ este lărgimea liniei. Formula probabilității de tranziție este valabilă numai dacă întinderea spectrală a radiației incidente este mult mai mică decît lărgimea liniei corespunzătoare tranzițiilor, iar raportul dintre frecvența tranzițiilor și lărgimea liniilor este mult mai mare decît unu, adică

$$\omega_{j1}\tau_{j1} \gg 1. \tag{10.21}$$

De asemenea, pentru ca medierea temporală să fie corectă trebuie ca timpul necesar tranziției să fie mare în comparație cu perioada perturbației armonice.

Probabilitatea de absorbție a doi fotoni $w_{(2)}$ este definită cu ajutorul relației

$$w_{(2)} = \frac{\partial \overline{\rho_{jj}^{(4)}}}{\partial t}. \tag{10.22}$$

Pentru determinarea elementelor de matrice ale operatorului densitate, corespunzătoare perturbației de ordinele trei și patru se folosește același procedeu ca și pentru determinarea elementelor de ordinele unu și doi, prezentate mai înainte. Astfel, pentru probabilitatea de tranziție care determină absorbția a doi fotoni se obține expresia [12]

$$w_{(2)} = \frac{\pi g_L(2\omega)}{8\hbar^4} \left| \sum_q \frac{\tilde{H}'_{jq}\tilde{H}'_{q1}}{\omega - \omega_{q1}} \right|^2 \tag{10.23}$$

unde

$$g_L(2\omega) = \frac{1}{\pi} \cdot \frac{1/\tau_{j1}}{(2\omega - \omega_{j1})^2 + 1/\tau_{j1}^2}. \tag{10.24}$$

Din relațiile (10.16) și (10.23) se observă că probabilitatea absorbției a doi fotoni este proporțională cu pătratul intensității radiației dacă hamiltonianul de interacție variază liniar cu cîmpul (cum este cazul interacțiilor de dipol și cuadrupol electric sau magnetic) în timp ce probabilitatea de absorbție a unui singur foton variază liniar cu intensitatea radiației.

Cu ajutorul relației (10.23) se pot determina condițiile care trebuie impuse parității stărilor între care au loc tranzițiile pentru absorbția a doi fotoni. Întrucît operatorul momentului de dipol electric este impar, trebuie ca tranzițiile să aibă loc între stări cu parități opuse. Deci, pentru ca ele-

mentele de matrice H'_{jq} și H'_{q1} să fie diferite de zero trebuie ca stările $|j\rangle$ și $|q\rangle$ și respectiv $|q\rangle$ și $|1\rangle$ să aibă parități opuse, adică tranzițiile care implică absorbția a doi fotoni trebuie să aibă loc între două stări $|1\rangle$ și $|j\rangle$ care au aceeași paritate. Aceleași condiții trebuie îndeplinite și în cazul tranzițiilor de cuadrupol electric (sau de dipol magnetic). Totuși, în cazul cristalelor, din cauza cîmpului local care poate distruge simetria de inversie, stările între care au loc tranzițiile care implică absorbția a doi fotoni pot să aibă parități mixte.

Continuînd procedeul prezentat mai înainte se poate calcula expresia generală pentru probabilitatea de absorbție a m fotoni între stările $|1\rangle$ și $|j\rangle$

$$w_{(m)} = \frac{\pi g_L(m\omega)}{2^{2m-1}\hbar^{2m}} \left| \sum_{q,k,\ldots,s,p} \frac{\widetilde{H}'_{jq} \cdot \widetilde{H}'_{qk} \ldots \widetilde{H}'_{sp} \widetilde{H}'_{p1}}{[(m-1)\omega - \omega_{q1}][(m-2)\omega - \omega_{k1}]\ldots} \times \right.$$

$$\left. \times \frac{1}{\ldots[2\omega - \omega_{s1}][\omega - \omega_{p1}]} \right|^2. \tag{10.25}$$

Din relația (10.25) se observă că dacă H' reprezintă operatorul tranzițiilor de dipol, probabilitatea de absorbție a m fotoni variază cu puterea m a intensității radiației și pentru stări care au o paritate definită, $|1\rangle$ și $|j\rangle$ trebuie să aibă aceeași paritate pentru m par și parități opuse pentru m impar.

Absorbția multifotonică mai poate fi caracterizată și de secțiunea eficace de absorbție care este definită după cum s-a mai arătat ca raportul dintre puterea absorbită pe unitatea de volum P_V și produsul dintre numărul de molecule pe unitatea de volum N_V și puterea medie pe unitatea de suprafață a radiației incidente I

$$\sigma_c = \frac{P_V}{N_V I}. \tag{10.26}$$

Secțiunea eficace de absorbție reprezintă aria efectivă prin care atomii (sau moleculele) absorb radiația incidentă și poate fi exprimată cu ajutorul probabilității de tranziție. Puterea absorbită de N_V atomi pe unitatea de volum este dată de produsul dintre energia implicată în tranziție, $\hbar\omega_{21}$, probabilitatea tranziției w și concentrația de atomi

$$P_V = N_V \hbar \omega_{21} w. \tag{10.27}$$

Ținînd seama de expresia densității de putere a radiației incidente

$$I = \frac{nc\varepsilon_0 |\mathbf{E}|^2}{2} \tag{10.28}$$

unde n reprezintă indicele de refracție, iar c viteza luminii, secțiunea eficace de absorbție este dată de relația

$$\sigma_c = \frac{2\hbar\omega_{21} w}{n\, c\, \varepsilon_0 |\mathbf{E}|^2}. \tag{10.29}$$

Cunoscînd expresia probabilității de tranziție $w_{(m)}$ (10.25), cu ajutorul relației (10.29) se pot calcula secțiunile eficace ale proceselor de absorbție multifotonică, atît pentru atomi (sau molecule) izolați cît și pentru medii dense, în acest ultim caz relația (10.29) trebuind să fie multiplicată cu un factor de corecție Lorentz din cauza variației indicelui de refracție.

Astfel, pentru un atom izolat, secţiunea eficace de absorbţie a unui foton

$$\sigma_{c(1)} = \frac{\pi\omega_{21}|\mathbf{d}_{12}|^2 g_L(\omega)}{3nc\varepsilon_0\hbar} \tag{10.30}$$

care are tăria oscilatorului apropiată de unitate, este de acelaşi ordin de mărime cu aria atomului: $2{,}6 \cdot 10^{-22}$ cm^2 [137].

Într-un sistem cu trei nivele energetice $|1\rangle$, $|2\rangle$ respectiv $|3\rangle$ ca nivel intermediar, secţiunea eficace pentru absorbţia a doi fotoni

$$\sigma_{c(2)} = \frac{\pi\omega g_L(2\omega)\,|\mathbf{d}_{32}|^2\,|\mathbf{d}_{31}|^2\,|\mathbf{E}|^2}{18nc\varepsilon_0\hbar^3(\omega-\omega_{31})^2} \tag{10.31}$$

(unde $\omega_{21}=2\omega$), depinde de intensitatea radiaţiei incidente, de frecvenţa ω şi are o valoare numerică de $\simeq 1{,}5 \cdot 10^{-25}$ cm^2 pentru un laser cu densitatea de putere de 10^7 W/cm^2. Secţiunea eficace pentru absorbţia a trei fotoni

$$\sigma_{c(3)} = \frac{3\pi\omega g_L(3\omega)}{16\hbar^5 nc\varepsilon_0}\left(\frac{|\mathbf{d}_{21}|^2}{3}\right)^3 \frac{|\mathbf{E}|^4}{[2\omega(\omega-\omega_{21})]^2} \tag{10.32}$$

(unde $\omega_{21} = 3\omega$), are o valoare şi mai mică de $\simeq 8 \cdot 10^{-32}$ cm^2 pentru un laser cu densitatea de putere de 10^7 W/cm^2.

În cazul absorbţiei mai multor fotoni, se poate obţine o relaţie de recurenţă pentru secţiunile eficace, de forma

$$\sigma_{c(m+1)} = 10^{-19}|E|^2\,\sigma_{c(m)}. \tag{10.33}$$

10.2. Procese multifotonice rezonante în atomi

Procesele în care tranziţiile între diferite nivele legate sau libere ale atomilor au loc prin absorbţia simultană a n fotoni sînt rezonante dacă suma energiilor celor n fotoni este egală cu diferenţa dintre energiile nivelelor implicate. O dată cu apariţia laserilor acordabili de mare putere, studiul proceselor multifotonice rezonante a căpătat o mare importanţă datorită aplicaţiilor la separarea izotopilor, inducerea de reacţii chimice, generarea radiaţiei coerente în domeniul ultraviolet al spectrului. Probabilitatea tranziţiilor multifotonice poate fi mult mărită dacă frecvenţa radiaţiei cîmpului excitator este acordată pe frecvenţa de rezonanţă corespunzătoare nivelelor intermediare. Se crează astfel posibilitatea investigării dependenţei proceselor multifotonice de frecvenţă şi intensitatea radiaţiei de pompaj, în vederea stabilirii condiţiilor optime de interacţie, întrucît chiar la rezonanţă există unele fenomene care limitează absorbţia, cum ar fi: saturaţia, schimbarea frecvenţei datorită radiaţiei incidente, tranziţiile inverse etc.

Procesul de excitare rezonantă poate avea loc fie prin utilizarea unor nivele intermediare, care implică de exemplu tehnici de rezonanţă cu trei nivele (prezentate la capitolul 17), fie prin absorbţia simultană a n fotoni.

Neglijînd fenomenul de saturaţie, probabilitatea de tranziţie poate fi calculată cu ajutorul teoriei perturbaţiilor. Pe baza modelului prezentat

în lucrarea [126] funcţia de undă $\psi(t)$ a unui atom poate fi dezvoltată într-un sistem complet de funcţii proprii ale stărilor excitate $|n\rangle$ de forma

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n C_n(t) e^{-\frac{i}{\hbar} E_n t} |n\rangle. \qquad (10.34)$$

Introducînd funcţia de undă dată de relaţia (10.34) în ecuaţia temporală a lui Schrödinger, se obţin pentru amplitudinile de probabilitate $C_p(t)$ următoarele ecuaţii de mişcare

$$\dot{C}_p = -i \sum_n d_{pn}(t) e^{-\frac{i}{\hbar} E_{np} t} C_n(t) \qquad (10.35)$$

unde, $d_{pn} = -\langle p|dE(t)|n\rangle$ reprezintă elementele de matrice ale tranziţiilor între două stări de energie E_p respectiv E_n. Sub acţiunea unei radiaţii de pompaj de frecvenţă ω, probabilitatea ca atomul să se afle într-o stare intermediară $|j\rangle$, $|C_j(t) e^{-\frac{i}{\hbar} E_j t}|^2$, se obţine în urma integrării relaţiei (10.35), cu condiţia iniţială

$$C_g(t) = C_g(0) = 1 \qquad (10.36)$$

sub forma

$$w_j(t) = \frac{|d_{jg}|^2}{\Delta_j^2 + \gamma_j^2/4} (1 + e^{-\gamma_j t} - 2(\cos\Delta_j t) e^{-\gamma_j t/2}). \qquad (10.37)$$

În relaţia (10.37), g specifică starea fundamentală, iar $\Delta_j = \omega_j - \omega$. Dependenţa probabilităţii de timp este prezentată în fig. 10.1.

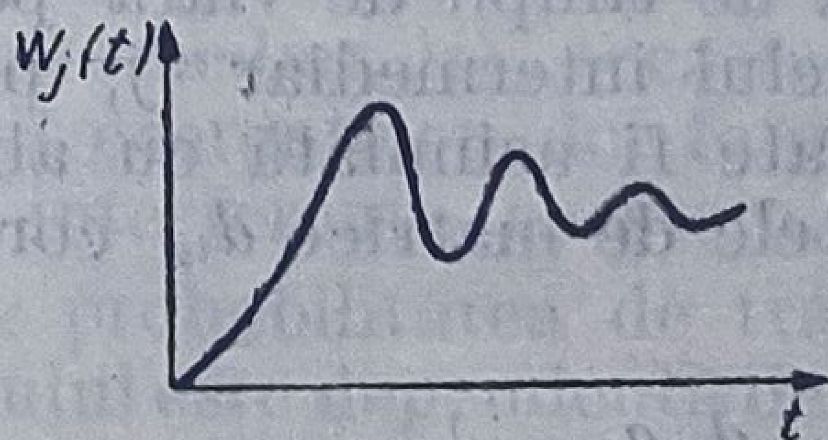


Fig. 10.1

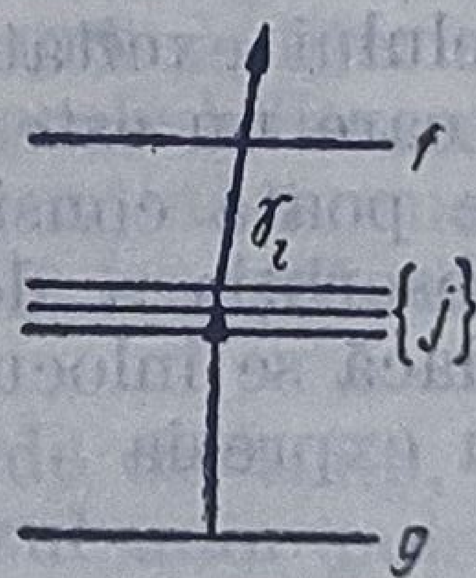


Fig. 10.2

Amplitudinea de probabilitate pentru ca atomul să se afle într-o stare finală $|f\rangle$ în urma absorbţiei a l fotoni, este dată de relaţia

$$C_f^{(l+1)}(t) = -i \sum_i \int_0^t d_{fi}(t') e^{\frac{i}{\hbar} E_{fi} t'} C_i^{(l)}(t') dt'. \qquad (10.38)$$

În cazul particular al absorbţiei rezonante a doi fotoni, care are loc prin intermediul nivelului $\{j\}$, pe baza schemei de mai jos,

$$C_g^{(0)}(t) \to C_{\{j\}}^{(1)}(t) \to C_f^{(2)}(t) \qquad (10.39)$$

şi a diagramei prezentate în fig. 10.2, amplitudinea de probabilitate devine

$$C_f^{(2)}(t) = -\sum_i \frac{d_{fi}d_{ig}}{i\Delta_i + \gamma_i/2}\left(\frac{(\exp\{i(\omega_f - 2\omega)t + \gamma_f t/2\} - 1}{i(\omega_f - 2\omega) + \gamma_f/2} \times \right.$$

$$\left. \times \frac{-\exp\left\{-i\left[\omega_i - \omega_f - \frac{i}{2}(\gamma_i - \gamma_f) + \omega\right]t\right\} - 1}{-i\left[\omega_i - \omega_f - \frac{i}{2}(\gamma_i - \gamma_f) + \omega\right]}\right). \quad (10.40)$$

Primul termen al relaţiei (10.40) reprezintă amplitudinea de probabilitate a tranziţiei coerente $C^{(2)}_{f2(c)}(t)$, care are loc pe baza absorbţiei rezonante a doi fotoni prin implicarea nivelului intermediar $\{j\}$. Această amplitudine depinde numai de dezacordul frecvenţelor $(\omega_f - 2\omega)$ determinat de absorbţia celor 2 fotoni şi de rata de relaxare γ_f a stării finale. Probabilitatea tranziţiei cu doi fotoni care implică un nivel intermediar $\{j\}$

$$w_{f2(c)}(t) = \sum_i \left|\frac{d_{fi}d_{ig}}{i\Delta_i + \gamma_j/2}\right|^2 \frac{1}{(\omega_f - 2\omega)^2 + \gamma_f^2/4} \times$$

$$\times [1 + e^{-\gamma_f t} - 2\cos(\omega_f - 2\omega)t\, e^{-\gamma_f t/2}] \quad (10.41)$$

depinde atît de dezacordul frecvenţelor $(\omega_f - 2\omega)$ determinat de absorbţia celor doi fotoni cît şi de cel corespunzător absorbţiei primului foton $\Delta_i = \omega_i - \omega$, însă nu depinde de dezacordul frecvenţelor procesului în treaptă $(\omega_f - \omega_i)$ care implică absorbţia celui de-al doilea foton de pe nivelul intermediar $\{j\}$. Ea, oscilează cu frecvenţa $(\omega_f - 2\omega)$, se relaxează la o valoare staţionară cu rata γ_f, iar dependenţa de timp este aceeaşi cu cea corespunzătoare unui singur foton prezentată în fig. 10.1. Întrucît relaxarea nivelului excitat rezultat din formula probabilităţii $w_{f2(c)}$ are loc cu o rată care nu este determinată de timpii de viaţă pe nivelele intermediare, se poate considera că nivelul intermediar $\{j\}$ poate fi chiar virtual, iar absorbţia a doi fotoni poate fi asimilată cu absorbţia unui singur foton dacă se înlocuiesc elementele de matrice d_{ig} corespunzătoare unui foton cu expresia

$$|d^{(2)}| = \left|\sum_i \frac{d_{fi}g_{ig}}{i\Delta_i + \gamma_i/2}\right| \quad (10.42)$$

care reprezintă frecvenţa Rabi pentru doi fotoni. În relaţia (10.42) operaţia de însumare se face înainte de a se calcula modulul, astfel că fenomenele de rezonanţă au loc cînd $\Delta_i = 0$ şi corespund unor maxime. Un astfel de fenomen de excitare în regim de tranziţie cu doi fotoni a fost pus în evidenţă experimental în lucrarea [127] cu ajutorul vaporilor de sodiu. Spectrul obţinut prin absorbţia în regim de tranziţie a doi fotoni prezentat în fig. 10.3 evidenţiază creşterea modulaţiei funcţie de dezacordul frecvenţelor $\Delta = \omega_f - 2\omega$ corespunzător absorbţiei a doi fotoni. Pentru a se observa aceste efecte a fost necesară eliminarea efectului Doppler prin diferite tehnici spectroscopice prezentate în cap. 20, precum şi a excitaţiei în treaptă, utilizînd valori mari ale dezacordului frecvenţelor

corespunzătoare unui singur foton. Detecția fost făcută prin înregistrarea spectrului de fluorescență obținut în urma tranzițiilor suferite de atomi de pe nivelul 4d corespunzător stării finale pe nivelul intermediar 3p.

Al doilea termen al relației (10.40)

$$C^{(2)}_{f(tr)}(t) = \sum_i \frac{d_{fi}d_{ig}}{i\Delta_i + \gamma_i/2}\left(\frac{\exp\left\{-i\left[\omega_i - \omega_f - \frac{i}{2}(\gamma_i - \gamma_f) + \omega\right]t\right\}}{-i\left[\omega_i - \omega_f - \frac{i}{2}(\gamma_i - \gamma_f) + \omega\right]}\right), \quad (10.43)$$

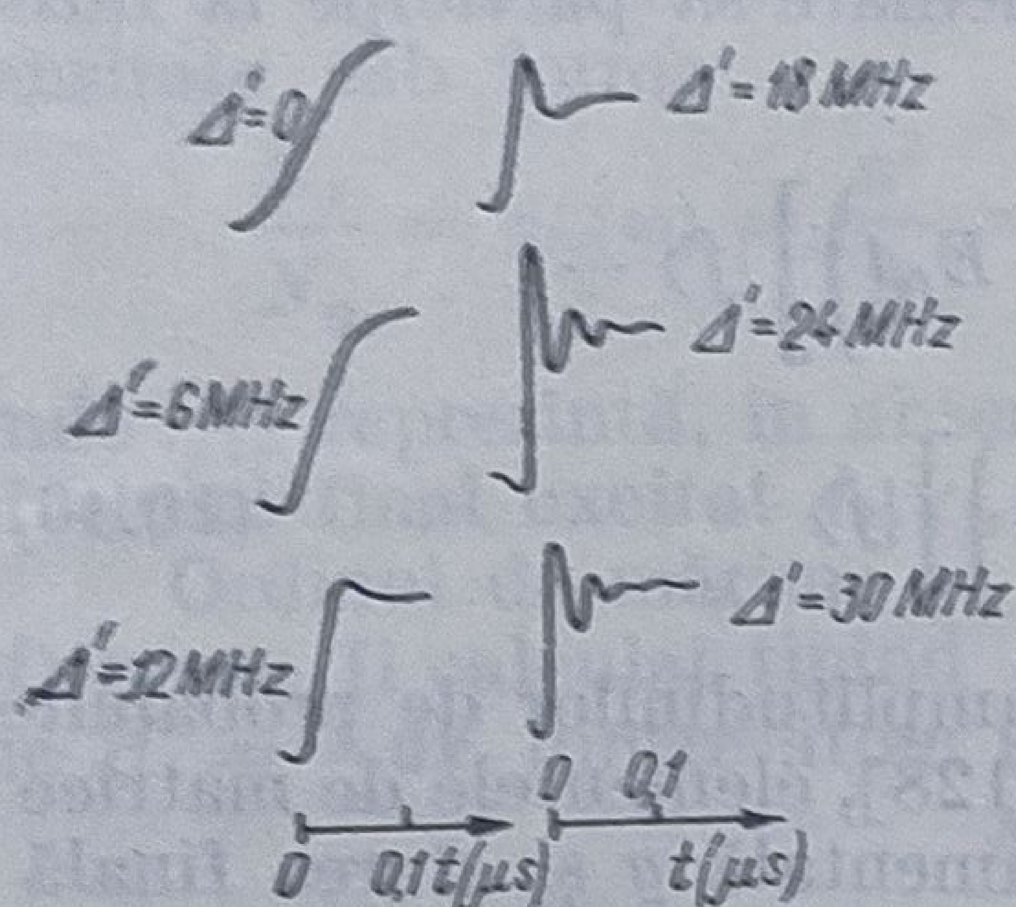


Fig. 10.3

corespunde așa-numitei excitații în treaptă și descrie excitarea necoerentă a atomilor în starea intermediară $|j\rangle$ și apoi în starea finală $|f\rangle$. Acest termen nu oscilează cu frecvența ω și se relaxează la o valoare staționară cu atît mai rapid cu cît crește intervalul de timp. Sub acțiunea unei radiații monocromatice, probabilitatea de excitare în treaptă, pentru o singură stare intermediară, este

$$w_{f(tr)} = \frac{|d_{ig}|^2}{(\omega_j - \omega)^2 + \gamma_i^2/4} \cdot \frac{|d_{fi}|^2}{(\omega_f - \omega_i - \omega)^2 + (\gamma_f - \gamma_i)^2/4} \times$$

$$\times (e^{-\gamma_f t} + e^{-\gamma_i t} - 2\cos(\omega_f - \omega_i - \omega)te^{-(\gamma_i + \gamma_f)t/2}). \quad (10.44)$$

Termenul $(\gamma_f - \gamma_i)$ care apare la numitorul relației (10.44) caracterizează competiția dintre procese cărora le corespund diferite rate de relaxare. Astfel, în general, pentru a caracteriza probabilitatea de tranziție pe un nivel intermediar $|j\rangle$, aceasta trebuie să conțină termenii corespunzători excitării coerente cu doi fotoni, excitării în treaptă, dar și termenii rezultați din interferența acestora.

Întrucît probabilitatea de tranziție depinde de timp, rezultă că și natura spectrului este dependentă de timp. În cazul unor pulsuri de scurtă durată, lărgimea efectivă a benzii radiației incidente $\Delta\omega \simeq t^{-1}$ este mare, astfel că la excitarea stării finale prin intermediul nivelului $|j\rangle$ contribuie atît procesele în treaptă, cît și cele determinate de absorbția coerentă a doi fotoni (fig. 10.4, a). Dacă durata pulsurilor este mare contribuția proceselor coerente la excitarea stării finale este determinantă (fig. 10.4,b).

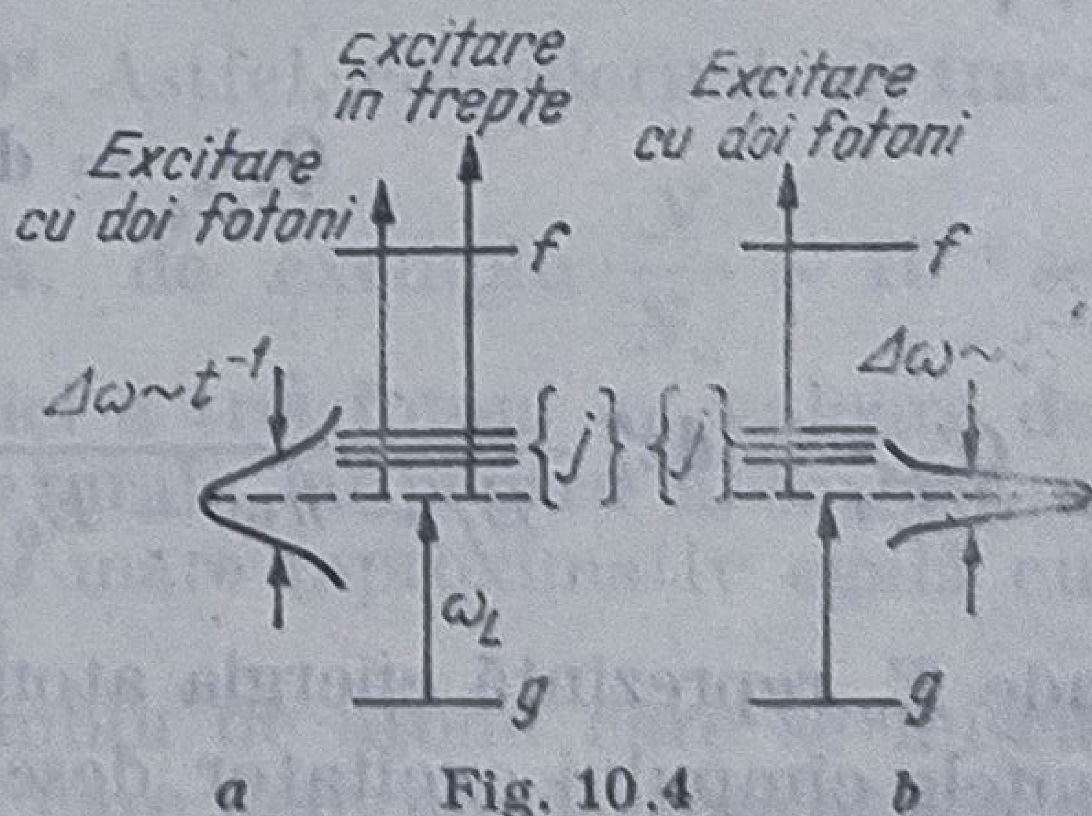


Fig. 10.4

Una din tehnicile de detecție a tranzițiilor multifotonice este legată de înregistrarea spectrului de fluorescență, semnalul obținut fiind proporțional cu populația nivelului final excitat N_f. Pentru aflarea populației nivelului excitat trebuie rezolvată ecuația de mișcare a operatorului densitate (anexa 1). În vederea simplificării

calculelor, se consideră că diferența $\hbar\Delta\omega_j = |\hbar\omega - E_{jg}|$ dintre energia diferitelor nivele excitate $j_1, j_2 \ldots$ și energia cîmpului excitator descris de o relație de forma

$$\mathbf{E}_p = Re\{\varepsilon_p \mathscr{E}_p \exp(-i\omega_p t)\}, \quad p = 1, 2, 3 \ldots \tag{10.45}$$

este mult mai mare decît lărgimea naturală și respectiv de saturație corespunzătoare tranzițiilor din starea fundamentală în diferite stări intermediare excitate, $g \to j$, și de aici în starea finală, $j \to f$, stările g și f fiind considerate nedegenerate.

De asemenea, se consideră că tranzițiile rezonante care implică n fotoni au loc în treaptă, fără ca nivelele intermediare să participe la rezonanță. Introducînd funcția de undă

$$|\psi\rangle = C_g(t)|g\rangle + C_f(t)\left[\exp\left(-\frac{i}{\hbar}E_{fg}t\right)\right]|f\rangle + $$

$$+ \sum_j C_j(t)\left[\exp\left(-\frac{i}{\hbar}E_{jg}t\right)\right]|j\rangle \tag{10.46}$$

în ecuația lui Schrödinger se obțin expresiile amplitudinilor de probabilitate. Pe baza modelului prezentat în lucrarea [128], elementele de matrice corespunzătoare tranzițiilor între starea fundamentală g și starea finală f sînt date de relațiile

$$\langle f|H_i|f\rangle = \frac{1}{4}\sum_p \sum_q \langle f|Q'_{\varepsilon_p \varepsilon_q^*}|f\rangle \mathscr{E}_p \mathscr{E}_q^* \exp[i(\omega_q - \omega_p)t] \tag{10.47}$$

$$\langle f|H_i|g\rangle = \frac{1}{2^3}\sum_p \sum_{q,r} \langle f|Q^{(n)}_{\varepsilon_p \varepsilon_q \ldots \varepsilon_r}|g\rangle \mathscr{E}_p \mathscr{E}_q^* \ldots \mathscr{E}_r [\exp[-i(\omega_p + $$

$$+ \omega_q + \ldots + \omega_r)t] \tag{10.48}$$

$$\langle g|H_i|g\rangle = \frac{1}{4}\sum_p \sum_q \langle g|Q_{\varepsilon_p^* \varepsilon_q}|g\rangle \mathscr{E}_p^* \mathscr{E}_q \exp[i(\omega_p - \omega_q)t]. \tag{10.49}$$

În expresia elementelor de matrice diagonale operatorii $Q_{\varepsilon_p^* \varepsilon_q}$ și $Q'_{\varepsilon_p \varepsilon_q^*}$ corespunzători absorbției a doi fotoni sînt definiți astfel

$$Q_{\varepsilon_p^* \varepsilon_q} = d\varepsilon_p^* \cdot \frac{1}{\hbar\omega - E_0} d\varepsilon_q \tag{10.50}$$

$$Q'_{\varepsilon_p \varepsilon_q^*} = d\varepsilon_p^* \frac{1}{E_f - \hbar\omega - E_0} d\varepsilon_q^* + d\varepsilon_q^* \frac{1}{E_f + \hbar\omega - E_0} d\varepsilon. \tag{10.51}$$

unde E_0 reprezintă energia atomului liber, iar ω poate fi oricare din frecvențele cîmpului excitator descris de relația (10.45). Operatorul $Q^{(n)}_{\varepsilon_p \varepsilon_q \ldots \varepsilon_r}$ care apare în elementele de matrice nediagonale este dat de relația

$$Q^{(n)}_{\varepsilon_p \varepsilon_q \ldots \varepsilon_r} = d\varepsilon_p \frac{1}{\hbar(\omega_q + \ldots + \omega_r) - E_0} d\varepsilon_q \ldots \frac{1}{\hbar\omega_r - E_0} d\varepsilon_r. \tag{10.52}$$

Elementele de matrice diagonale în cazul tranzițiilor cuantice care implică n fotoni sînt proporționale cu pătratul amplitudinii cîmpului electric $\mathscr{E}^2$ și determină schimbarea frecvenței, iar elementele de matrice nediagonale sînt proporționale cu $\mathscr{E}^n$ și produc saturația. Efectele determinate de schimbarea frecvenței pot deveni foarte importante chiar dacă în timpul tranzițiilor nu se ajunge la saturație, astfel că în practică este necesar ca să fie admisă o anumită valoare a variației frecvenței pentru a obține o rată de tranziție semnificativă N_f/N_0.

Dacă nu se iau în considerare fenomenele de saturație, la rezonanță, fracțiunea de atomi aflați în stare excitată $|f\rangle$ ca rezultat al absorbției a n fotoni se calculează cu ajutorul elementelor de matrice ale operatorului densitate sub forma

$$\frac{N_f}{N_0} = \rho_{ff}(\omega) = \frac{a^2}{2} = 2\left|\langle f|Q^{(n)}_{\varepsilon_1\ldots\varepsilon_n}|\, g\rangle\left(\frac{\mathscr{E}}{2}\right)^n\right|^2 (\hbar^2\gamma_f\gamma_{fg})^{-1} \qquad (10.53)$$

unde : γ_f reprezintă, în absența ciocnirilor, inversului timpului de viață al nivelului final excitat f, $\gamma_{fg} = \gamma_f/2$, iar a^2 este parametrul de saturație.

Ordinul de mărime al fracțiunii de atomi aflați în stare excitată $|f\rangle$ poate fi calculat ținînd seama de expresia hamiltonianului de interacție $H_i = -\mathbf{dE}$ dintre atom și cîmpul exterior, cu ajutorul relației

$$\frac{N_e}{N_0} = \frac{H_i^{2n}}{(\Delta\omega)^{2n-2}\gamma_f^2}. \qquad (10.54)$$

În relația (10.54) $\hbar\Delta\omega$ este diferența dintre energiile diferitelor nivele E_j care sînt implicate în tranzițiile cu 1,2, . . ., n fotoni și energia cîmpului incident. Cu ajutorul relației (10.54) se poate calcula mărimea s care determină schimbarea frecvenței la numitorii relațiilor (10.50)—(10.52), sub forma

$$\left(\frac{s}{\hbar\gamma_f}\right)^n \sim \left(\frac{\Delta\omega}{\gamma_f}\right)^{n-2}\frac{N_f}{N_0}. \qquad (10.55)$$

Dacă în tranziții sînt implicați doi fotoni, raportul $s/\hbar\gamma_f$ dintre mărimea deplasării frecvenței și lărgimea naturală a nivelului final excitat este de ordinul de mărime al ratei de tranziție N_f/N_0. Pentru această rată de tranziție în cazul absorbției a n fotoni, raportul $s/\hbar\gamma_f$ este multiplicat cu factorul $\left(\frac{\Delta\omega}{\gamma_f}\right)^{-2/n}$ care crește cu creșterea numărului de fotoni n pînă la valori ale raportului $\frac{\Delta\omega}{\gamma_f}$ de ordinul 10^7—10^8. Astfel, considerînd că fracțiunea de atomi excitați este relativ mică, de exemplu $\frac{N}{N_0} \sim 10^{-6}$ se obține pentru mărimea s în cazul absorbției a trei fotoni o valoare de același ordin de mărime cu cea a lărgimii naturale, iar pentru absorbția a patru fotoni, o valoare de o mie de ori mai mare (aproximativ egală cu lărgimea datorită efectului Doppler) ș.a.m.d.

În urma interacției dintre un ansamblu de atomi care se mișcă cu viteza $\mathbf{v}$ și mai multe radiații de pompaj care determină absorbția a n fotoni care au vectorii de undă $\mathbf{k}_1, \ldots, \mathbf{k}_n$, frecvența tranzițiilor este deplasată datorită efectului Doppler cu o cantitate egală cu $\sum_{i=1}^{n} \mathbf{k}_i\mathbf{v}$. Eli-

minarea lărgimii liniilor spectrale datorită efectului Doppler, care maschează structura hiperfină se poate face utilizînd pentru iradiere mai multe fascicule care au direcţii diferite, astfel încît suma vectorială a vectorilor de undă să fie egală cu zero

$$\sum_{i=1}^{n} \mathbf{k}_i = 0. \tag{10.56}$$

În cazul absorbţiei a doi fotoni, cei doi vectori de undă trebuie să fie egali în mărime şi de sens contrar. Această condiţie poate fi îndeplinită şi în cazul undelor staţionare obţinute în urma reflexiei radiaţiei laser pe o oglindă (cap. 17). Dacă în tranziţie sînt implicaţi mai mulţi de doi fotoni, pentru aceeaşi valoare a energiei există mai multe posibilităţi de alegere a vectorilor de undă ai radiaţiilor incidente. Astfel, pentru ca absorbţia a trei fotoni să aibă loc fără efect Doppler, trebuie ca vectorii de undă ai radiaţiilor incidente să verifice relaţiile triunghiului.

Relaţia (10.56) mai poate fi privită şi ca o lege de conservare a impulsurilor fotonilor absorbiţi. Impulsul total al fotonilor absorbiţi fiind egal cu zero, viteza lor nu se schimbă astfel că toată energia fotonilor se transformă în energie internă conform relaţiei

$$E_{fg} = \sum_{i=1}^{n} \hbar c k_i. \tag{10.57}$$

De asemenea, întrucît impulsul total este zero, nu există efect de recul al atomului excitat, iar ca rezultat, liniile spectrale sînt lărgite din cauza efectului Doppler de ordinul doi, a cărui mărime $E_{fg}\frac{v^2}{2c^2}$, este prea mică pentru a putea fi observată.

10.3. Ionizarea atomilor prin absorbţia rezonantă a mai multor fotoni

Printre metodele de ionizare ale atomilor se numără şi cea care foloseşte excitarea multifotonică [128].

S-a constatat că numărul de ioni obţinuţi creşte foarte mult cînd frecvenţa radiaţiei excitatoare este astfel aleasă încît să aibă loc o tranziţie rezonantă pe un nivel intermediar, cu participarea mai multor fotoni. Astfel, de exemplu, numărul ionilor de cesiu obţinuţi prin absorbţia a patru fotoni produşi de un laser cu $\lambda = 1{,}06$ μm creşte foarte mult atunci cînd nivelul intermediar $6F$ este excitat rezonant cu trei fotoni (fig. 10.5).

La rezonanţă, un rol important îl joacă fenomenele de saturaţie şi de deplasare a frecvenţei. Pentru o intensitate a radiaţiei excitatoare

$I = 1$ GW/cm^2, în cazul cesiului, de exemplu, lungimea de undă a radiației excitatoare pentru tranziția $6S \to 6F$, care corespunde absorbției rezonante a trei fotoni este deplasată cu aproximativ 1Å.

Ținînd seamă de această deplasare a frecvenței se poate explica variația ordinului de neliniaritate corespunzător procesului de ionizare prin absorbția rezonantă a n fotoni. Ordinul de neliniaritate K este caracteristic fenomenelor neliniare și este definit în cazul ionizării de relația

$$K = \frac{\partial \log N_I}{\partial \log I} \tag{10.58}$$

unde N_I reprezintă numărul de ioni obținuți în urma tranzițiilor multifotonice, iar I este intensitatea radiației incidente. Dacă fenomenul de rezonanță nu are loc pentru nici un nivel intermediar, K este egal cu numărul de fotoni K_0 necesari fotoionizării. La rezonanță, din cauza deplasării frecvenței, numărul de fotoni K_0 crește sau descrește funcție de semnul dezacordului $(E_{fg} - n\hbar\omega)$, fiind necesari pentru ionizare, de o parte a frecvenței de rezonanță $(E_{fg} = n\hbar\omega)$ un număr de fotoni K mai mare decît K_0, iar de cealaltă parte un număr mai mic. Variația lui K funcție de dezacordul $\Delta_0 = E_{fg} - n\hbar\omega$, în cazul cesiului este prezentat în fig. 10.6.

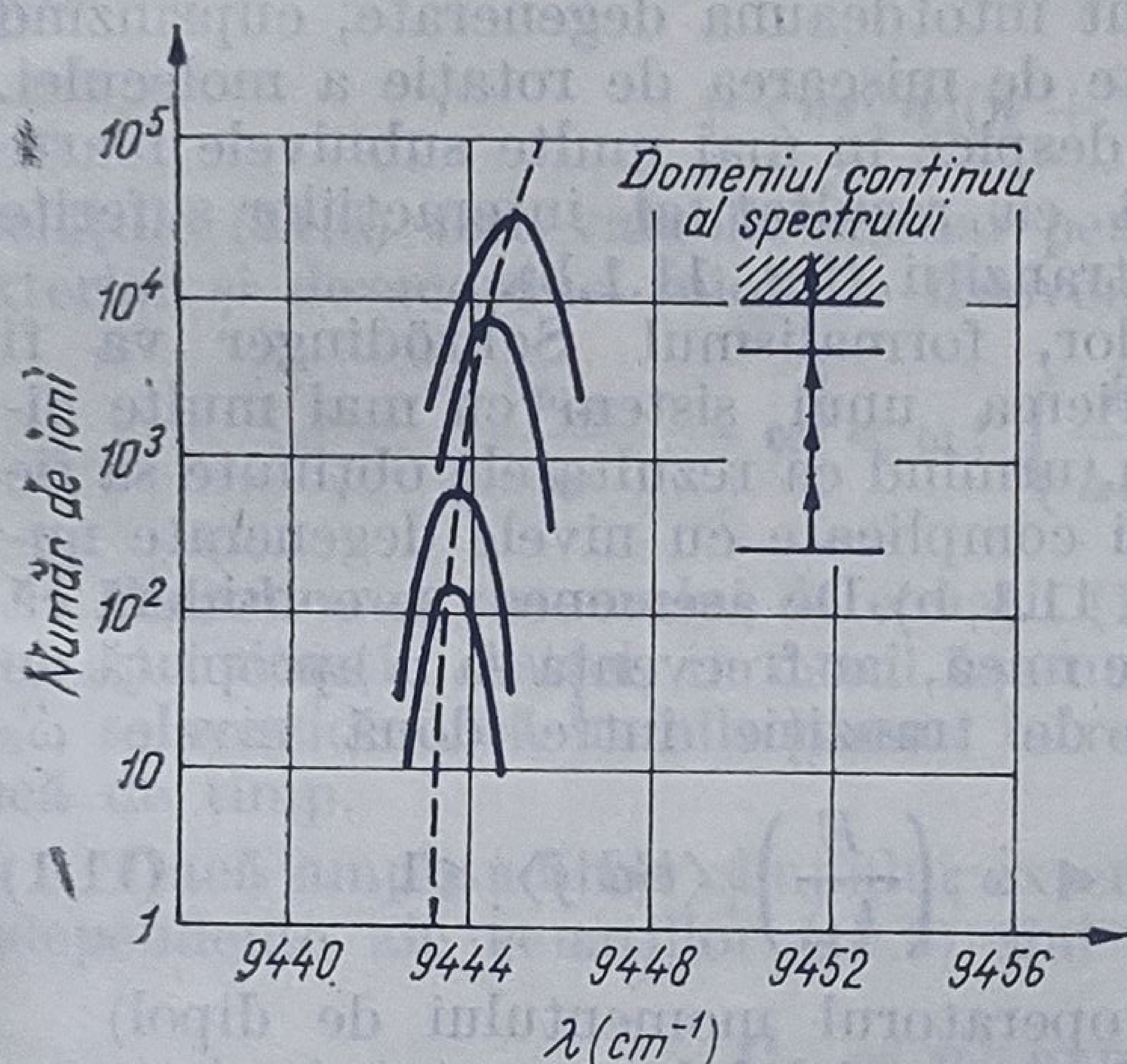


Fig. 10.5

Asimetria curbei din fig. 10.6 poate fi explicată luînd în considerare interferența dintre cele două căi posibile de ionizare. Conform primei căi de ionizare, numită și nerezonantă, toate stările intermediare sînt considerate virtuale cu excepția nivelului cvasirezonant $6F$. În cazul celei de-a doua căi de ionizare (rezonantă) se consideră ca nivel intermediar nivelul $6F$. De fapt ionizarea se obține prin interferența celor două căi, semnul dezacordului $(E_{fg} - n\hbar\omega)$ fiind determinat de caracterul constructiv sau destructiv al acestor interferențe.

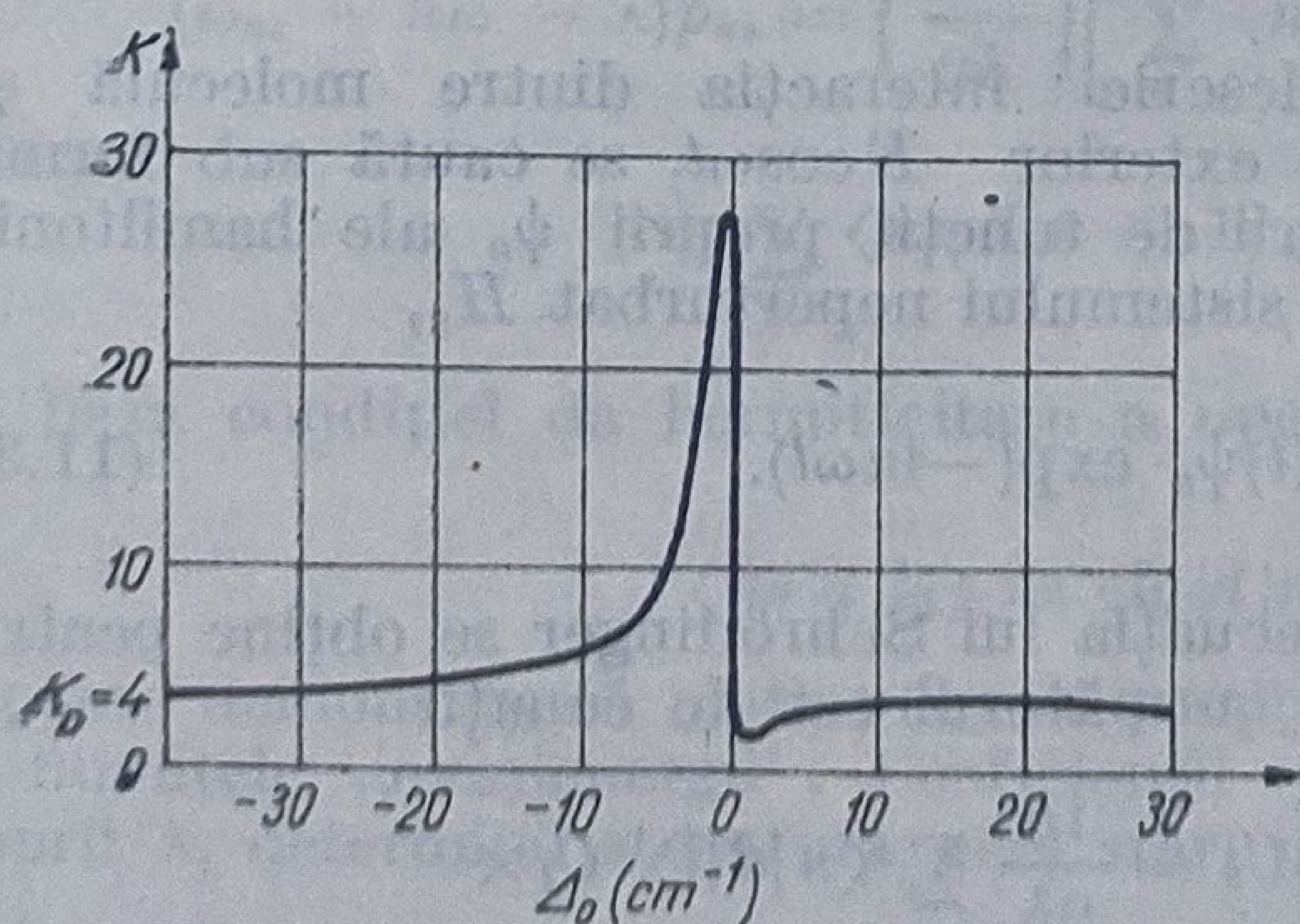


Fig. 10.6

11. EXCITAREA MULTIFOTONICĂ COERENTĂ A MOLECULELOR

11.1. Descrierea sistemelor moleculare cu mai multe nivele energetice cu formalismul Schrödinger

Stările energetice corespunzătoare mişcării de rotaţie-vibraţie ale unei molecule poliatomice libere sînt întotdeauna degenerate, cuprinzînd cel puţin $2J + 1$ nivele, determinate de mişcarea de rotaţie a moleculei. Aceste nivele degenerate pot să se despice în mai multe subnivele foarte apropiate, cu energie cvasicontinuă ca rezultat al interacţiilor suferite de molecule, determinînd diferite tranziţii (fig. 11.1,b).

Pentru simplificarea calculelor, formalismul Schrödinger va fi aplicat la început pentru descrierea unui sistem cu mai multe nivele nedegenerate, $|n\rangle$ (fig. 11.1,a), urmînd ca rezultatele obţinute să fie generalizate în cazul sistemelor mai complicate cu nivele degenerate numite şi sisteme de „multipleţi'' (fig. 11.1, b). De asemenea, se consideră că intensitatea cîmpului exterior E este mică, iar frecvenţa sa ω apropiată de frecvenţa de tranziţie între două nivele ω_i

$$|\omega_{ij} - \omega| \ll \omega ; \left(\frac{E}{\hbar\omega}\right) |\langle i|d|j\rangle| \ll 1 \qquad (11.1)$$

(d fiind operatorul momentului de dipol)

Pe baza modelului prezentat în lucrarea [128], soluţia ecuaţiei lui Schrödinger

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = \hat{H}_0\psi - (d\, E \cos\omega t)\psi \qquad (11.2)$$

Fig. 11.1

care descrie interacţia dintre moleculă şi cîmpul exterior $E\cos\omega t$, se caută sub forma unei serii de funcţii proprii ψ_n ale hamiltonianului sistemului neperturbat H_0,

$$\psi = \sum_n C_n(t)\psi_n \exp(-in\omega t). \qquad (11.3)$$

Înlocuind funcţia de undă ψ în ecuaţia lui Schrödinger se obţine pentru amplitudinile de probabilitate C_n următorul set de ecuaţii

$$\frac{dC_n}{dt} + i(\omega_n - n\omega)C_n = \frac{iE}{2\hbar} \sum_l \langle n|d|l\rangle\, C_l \times$$
$$\times \{\exp[i(n - l + 1)\omega t] + \exp[i(n - l - 1)\omega t]\}. \qquad (11.4)$$

Ținînd seama de condițiile de excitare date de relația (11.1), amplitudinile de probabilitate care caracterizează tranzițiile între nivelele adiacente cu $l = n \pm 1$, se pot calcula din relația

$$\frac{dC_n}{dt} + i(\omega_n - n\omega)C_n = \left(\frac{iE}{2\hbar}\right)(\langle n|d|n-1\rangle C_{n-1} + $$
$$+ \langle n|d|n+1\rangle C_{n+1}). \quad (11.5)$$

În cazul general, cînd nivelele energetice sînt degenerate, notînd cu indicele s stările unui multiplet, ecuațiile (11.5) pentru amplitudinile de probabilitate C_{ns} corespunzătoare componentelor multipleților adiacenți, devin

$$\frac{dC_{ns}}{dt} + i(\omega_{ns} - n\omega)C_{ns} = \frac{iE}{2\hbar}\sum_q [\langle ns|d|n-1, q\rangle \ C_{n-1,q} +$$
$$+ \langle ns|d|(n+1, q\rangle \ C_{n+1,q}]. \quad (11.6)$$

Relațiile (11.6) sînt valabile numai pentru intensități mici ale cîmpului exterior și dezacorduri mici ale frecvențelor care verifică relațiile

$$\left|\frac{\omega_{ns}}{n} - \omega\right| \ll \omega \, ; \left(\frac{E}{\hbar\omega}\right)\left|\langle ns|d|lq\rangle\right| \ll 1. \quad (11.7)$$

Rezolvarea sistemului de ecuații (11.6) se poate face utilizînd diferite aproximații. Astfel, în cazul așa-numitei aproximații „cvasienergetice'', se consideră că hamiltonianul întregului sistem este o funcție periodică de timp.

Dacă amplitudinea cîmpului exterior este constantă, soluțiile liniar independente ale ecuațiilor (11.6) sînt de forma

$$C_{ns} = p_{ns} \exp(-i\lambda t) \quad (11.8)$$

unde λ este valoarea proprie a următorului sistem de ecuații liniare, independente de timp (11.6)

$$(\omega_{ns} - n\omega - \lambda)p_{ns} = \left(\frac{E}{2\hbar}\right)\left[\sum_q \langle ns|d|n-1, \ q\rangle \ p_{n-1,q} + \right.$$
$$\left. + \sum_q \langle ns|d|n+1, q\rangle \ p_{n+1,q}\right]. \quad (11.9)$$

Pe baza condiției de hermiticitate a operatorului momentului de dipol

$$\langle ns|d|lq\rangle = \langle lq|d|ns\rangle^* \quad (11.10)$$

se poate demonstra că toate valorile proprii λ sînt reale, ele reprezentînd așa-numitele „cvasienergii'. Coeficienții p_{ns} corespunzători unei valori proprii λ, determină structura unei stări descrisă de funcția $\psi(\lambda)$

$$\psi(\lambda) = \exp(-i\lambda t) \sum_{n,s} p_{ns}(\lambda)\psi_{ns} \ \exp(-in\omega t). \quad (11.11)$$

Vectorii proprii corespunzători la două „cvasienergii'' diferite λ_1, λ_2 sînt ortogonali şi pot fi normaţi la unitate pe baza relaţiilor cunoscute

$$\sum_{n,s} p^*_{ns}(\lambda)p_{ns}(\lambda) = 1 \tag{11.12}$$

$$\sum_{n,s} p^*_{ns}(\lambda)p_{ns}(\lambda') = \delta(\lambda - \lambda') \tag{11.13}$$

care corespund spectrului discret (11.12), respectiv continuu (11.13). Aproximînd spectrul cvasicontinuu cu unul continuu şi ţinînd seama că la momentul iniţial sistemul se află în starea staţionară descrisă de vectorul $|n_0, s_0\rangle$, soluţia ecuaţiei (11.5) este

$$C_{ns}(t) = \int u(\lambda)p_{ns}(\lambda)\exp(-i\lambda t)d\lambda \tag{11.14}$$

unde funcţia $u(\lambda)$ trebuie să verifice relaţia

$$\int u(\lambda')p_{ns}(\lambda')d\lambda' = \delta_{n,n_0}\ \delta_{s,s_0}. \tag{11.15}$$

Înmulţind relaţia (11.15) cu $p^*_{ns}(\lambda)$ şi ţinînd seama de condiţia de normare (11.13) se obţine, în urma operaţiei de însumare după valorile lui n, pentru funcţia $u(\lambda)$ expresia

$$u(\lambda) = p_{n_0,s_0}(\lambda). \tag{11.16}$$

Relaţiile (11.14)—(11.16) sînt valabile şi în cazul unui spectru discret cu un număr finit de nivele, obţinîndu-se în acest caz un număr finit de valori proprii şi de asemenea în cazul unui spectru complex care conţine o parte continuă şi alta discretă.

Rezolvarea sistemului de ecuaţii (11.6) prin metoda aproximaţiei „cvasienergetice'' este posibilă şi în cazul în care cîmpul se „roteşte'' foarte încet (aşa-numita aproximaţie adiabatică)

„Cvasienergia'' sistemului, aflat la momentul iniţial în starea $|n_0s_0\rangle$, este egală cu $(\omega_{n_0s_0} - n_0\omega)$.

În timpul creşterii amplitudinii cîmpului de la zero la o valoare maximă, valoarea „cvasienergiei'' se modifică continuu. Dacă amplitudinea cîmpului creşte suficient de încet şi nivelele nu se intersectează între ele, atunci la un moment dat sistemul se află într-o stare în care toţi atomii sînt excitaţi, care corespunde valorii proprii $\lambda_{n_0s_0}$. Sistemul poate să revină la starea iniţială dacă cîmpul este suprimat adiabatic sau poate să se afle într-o stare rezultată dintr-o superpoziţie de stări $|ns\rangle$ chiar pentru un cîmp cu intensitatea nulă dacă acesta este suprimat foarte rapid. Se poate considera că transformarea are loc adiabatic dacă este îndeplinită condiţia

$$\frac{dE}{dt} \ll E|\Delta\lambda| \tag{11.17}$$

unde $\Delta\lambda$ reprezintă mărimea intervalului dintre două nivele „cvasienergetice'' vecine.

11.2. Interacţia cvasirezonantă dintre radiaţia laser şi un sistem cu mai multe nivele energetice nedegenerate şi echidistante

Descrierea fenomenului de excitare a unui sistem cu mai multe nivele energetice nedegenerate şi echidistante (fig. 11.1,a) poate fi făcută cu ajutorul ecuaţiei (11.5), care dă evoluţia în timp a amplitudinilor de probabilitate. Pentru simplificarea calculelor se poate considera că starea finală este atinsă în urma unui proces de excitare în treaptă, în care fiecare treaptă corespunde unei singure tranziţii. Elementele de matrice ale acestor tranziţii de dipol între două nivele adiacente se pot exprima cu ajutorul *frecvenţelor Rabi*, sub forma

$$\left(\frac{E}{2\hbar}\right)\langle n-1|\,d\,|n\rangle = \gamma_n^R = \left(\frac{E}{2\hbar}\right)\langle n|\,d\,|n-1\rangle. \tag{11.18}$$

La rezonanţă, în cazul unui sistem cu două nivele energetice, frecvenţa Rabi γ_n^R reprezintă frecvenţa de oscilaţie a amplitudinii de probabilitate (vezi relaţia 7.45)).

Procesul de excitare a sistemelor cu mai multe nivele energetice nedegenerate şi echidistante prezintă anumite particularităţi care sînt determinate de dependenţa momentelor de dipol, de ordinul tranziţiei, de numărul total de nivele (finit sau infinit) şi de asemenea, de dezacordul dintre frecvenţa cîmpului şi frecvenţa tranziţiei dintre două nivele. În cazul sistemului cu un număr infinit de nivele, spectrul „cvasienergiei" este continuu, dar întins pe un segment limitat al unei linii reale.

Dacă fenomenul de excitare are loc la rezonanţă se pot obţine soluţii analitice pentru diferite cazuri particulare. În acest caz ecuaţiile de mişcare pentru amplitudinile de probabilitate C_n sînt următoarele

$$\frac{dC_0}{dt} = i\gamma_1^R C_1 \tag{11.19}$$

$$\frac{dC_n}{dt} = i(\gamma_n^R C_{n-1} + \gamma_{n+1}^R C_{n+1})\,;\ n \geqslant 1. \tag{11.20}$$

Sistemele aflate în interacţie cu cîmpul sînt astfel alese încît la momentul iniţial $t = 0$,

$$C_n(0) = \delta_{no}\,;\ p_0 = 1 \tag{11.21}$$

iar pentru un număr finit de nivele N, suficient de mare,

$$C_N = 0\ \ (\text{sau}\ \gamma_N^R = 0). \tag{11.22}$$

Printre cazurile particulare care permit obţinerea de soluţii analitice se numără cel al oscilatorului armonic şi cel al unui sistem cu un număr finit (infinit) de nivele energetice, caracterizat de momente de dipol constante sau descrescătoare.

11.2.1 Oscilatorul armonic

După cum este cunoscut din literatura de specialitate [128], valorile proprii ale „cvasienergiei'' λ, aparţin intervalului $(-\infty, +\infty)$, vectorii proprii sînt daţi de expresia : $(-1)^n(2^n n!)^{-1/2}\, H_n(\lambda/\sqrt{2}\gamma^R)$, H_n fiind polinoamele lui Hermite, iar frecvenţele Rabi au valoarea

$$\gamma_n^R = \gamma^R n^{1/2}. \tag{11.23}$$

Pentru obţinerea unei soluţii analitice care să satisfacă condiţiile iniţiale date de relaţia (11.21) se pot folosi relaţiile de ortogonalitate ale polinoamelor lui Hermite, care conduc pentru amplitudinile de probabilitate C_n la expresii de forma

$$C_n(t) = (\pi\, 2^n n!)^{-1/2} \int_{-\infty}^{+\infty} H_n(z) \exp(-z^2 + \mathrm{i}\sqrt{2}\gamma^R tz)\mathrm{d}z. \tag{11.24}$$

În urma integrării, expresia amplitudinii de probabilitate devine

$$C_n(t) = (n!)^{-1/2} (\mathrm{i}\gamma^R t)^n \exp\left(-\frac{(\gamma^R)^2}{2}\right). \tag{11.25}$$

Cu ajutorul amplitudinii de probabilitate se poate calcula funcţia de distribuţie a populaţiilor, care este de tip Poisson

$$C_n^* C_n = (n!)^{-1} (\gamma^R t)^{2n} \exp(-(\gamma^R)^2 t^2). \tag{11.26}$$

Ţinînd seama de expresia valorii medii

$$\bar{n} = \sum_{n=1} n\, C_n^* C_n = (\gamma^R)^2 t^2 \tag{11.27}$$

şi de cea a abaterii

$$\sigma = (\bar{n}^2 - \bar{n}^2)^{1/2} = \left(\sum_{n=1}^{\infty} n^2 C_n^* C_n - \bar{n}^2\right)^{1/2} = \gamma^R t, \tag{11.28}$$

se poate deduce că energia medie a oscilatorului armonic excitat la rezonanţă creşte proporţional cu $E^2 t^2$. În cazul excitării cu o radiaţie intensă $(\gamma t \gg 1)$, funcţia de distribuţie a populaţiilor are o formă apropiată de funcţia de distribuţie a lui Gauss. Astfel funcţia

$$S_k(t) = \sum_{n=k}^{\infty} C_n^* C_n = 1 - \sum_{n=0}^{k-1} C_n^* C_n, \tag{11.29}$$

ce caracterizează populaţia sistemului pe un nivel fixat k, variază în timp foarte rapid de la valoarea zero la unu, în cazul oscilatorului armonic pentru valori ale lui $k \geqslant 50$ (fig. 11.2).

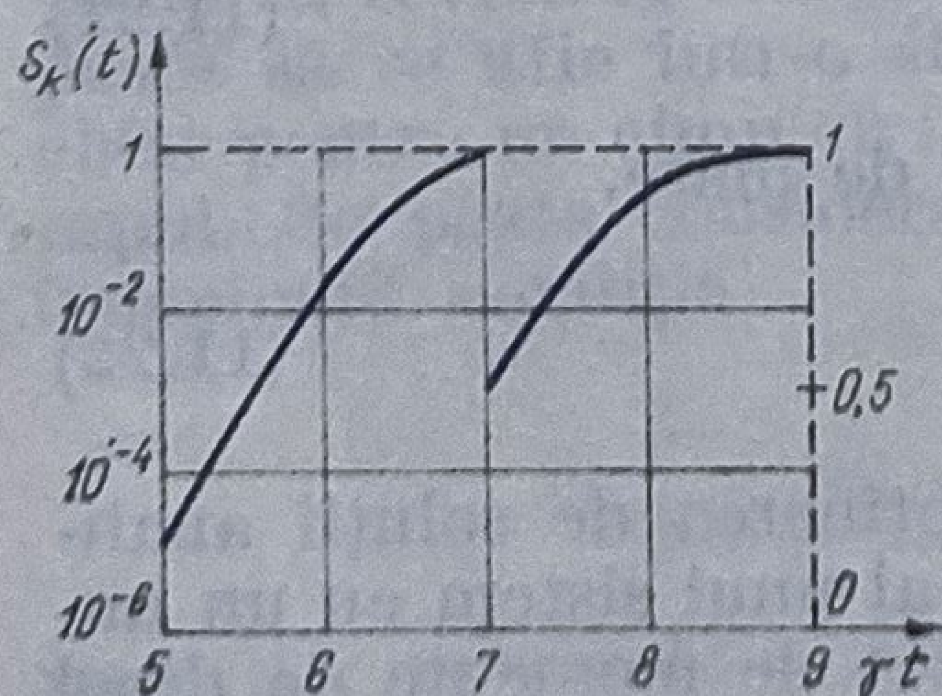


Fig. 11.2

11.2.2 Sisteme cu un număr infinit de nivele caracterizate de momente de dipol constante

Şi în acest caz spectrul valorilor „cvasienergiei" este continuu însă nu mai este infinit ca în cazul oscilatorului armonic, ci este cuprins în intervalul $(-2\gamma^R, 2\gamma^R)$. Vectorii proprii pot fi exprimaţi cu ajutorul polinoamelor lui Cebîşev de speţa a doua, prin relaţii de forma $(-1)^n U_n(\lambda/2\gamma^R)$ iar frecvenţele Rabi sînt constante [128]

$$\gamma_n^R = \gamma^R = \text{const.} \tag{11.30}$$

Soluţia analitică poate fi obţinută, fie pe baza metodei generale prezentată în § 11.1, fie cu ajutorul relaţiilor de ortogonalitate pe care le verifică polinoamele lui Cebîşev de speţa a doua. Utilizînd cea de-a doua metodă, amplitudinile de probabilitate se pot exprima cu ajutorul unei integrale de forma

$$C_n(t) = \frac{2}{\pi}\int_{-1}^{1}(1-z^2)^{1/2}\, U_n(z)\exp(2\mathrm{i}\gamma^R tz)\,\mathrm{d}z \tag{11.31}$$

care se poate calcula cu ajutorul funcţiilor Bessel de speţa întîi J_n, astfel

$$C_n(t) = \mathrm{i}^n[J_n(2\gamma^R t) + J_{n+2}(2\gamma^R t)]. \tag{11.32}$$

Pentru a calcula funcţia de distribuţie a populaţiilor după nivele $C_n^* C_n$, trebuie să ţinem seama de dezvoltarea asimptotică a funcţiilor Bessel. Cu ajutorul acestei dezvoltări se poate considera că în orice moment de timp pentru care este îndeplinită relaţia $\gamma^R t \gg 1$, maximul funcţiei de distribuţie corespunde acelor nivele care sînt caracterizate de numere n_{max} cuprinse în intervalul

$$2\gamma^R t - (2\gamma^R t)^{1/3} < n_{max} < 2\gamma^R t + (2\gamma^R t)^{1/3}. \tag{11.33}$$

În afara acestui interval, funcţia de distribuţie scade exponenţional pentru $n > 2\gamma^R t$ şi are o comportare oscilatorie pentru $n < 2\gamma^R t$. Pentru valorile lui n cuprinse în interiorul intervalului $\{2\gamma^R t - (2\gamma^R t)^{1/3}, 2\gamma^R t + (2\gamma^R t)^{1/3}\}$ funcţia de distribuţie scade după legea

$$C_n^* C_n \sim \frac{(n+1)^2}{\pi(\gamma^R t)^2[4(\gamma^R t)^2 - (n-1)^2]^{1/2}}. \tag{11.34}$$

Funcţia de distribuţie a populaţiilor (11.29) în cazul unui sistem infinit, cu momente de dipol egale, calculată cu ajutorul relaţiei (11.34) are forma

$$S_k(t) \sim 1 - \frac{2}{\pi}\left\{\arcsin\frac{k+1}{2\gamma^R t} + \frac{(k+1)^2}{4(\gamma^R t)^2}\cdot\left[\left(\frac{2\gamma^R t}{k+1}\right)^2 - 1\right]^{1/2}\right\} \tag{11.35}$$

pentru $\frac{2\gamma^R t}{k+1} > 1$. Dependenţa de timp a populaţiei totale (11.35) a sistemelor cu un număr infinit de nivele caracterizate prin momente de dipol constante, pentru nivele cu $k \geqslant 50$ este prezentată în fig. 11.3.

Se observă că pentru $k \geqslant 50$ se obţine o competiţie între oscilaţiile relativ rapide şi creşterea gradată a populaţiei. În comparaţie cu oscilatorul armonic (fig. 11.2), trecerea sistemului pe un anumit nivel în acest caz are loc mult mai încet.

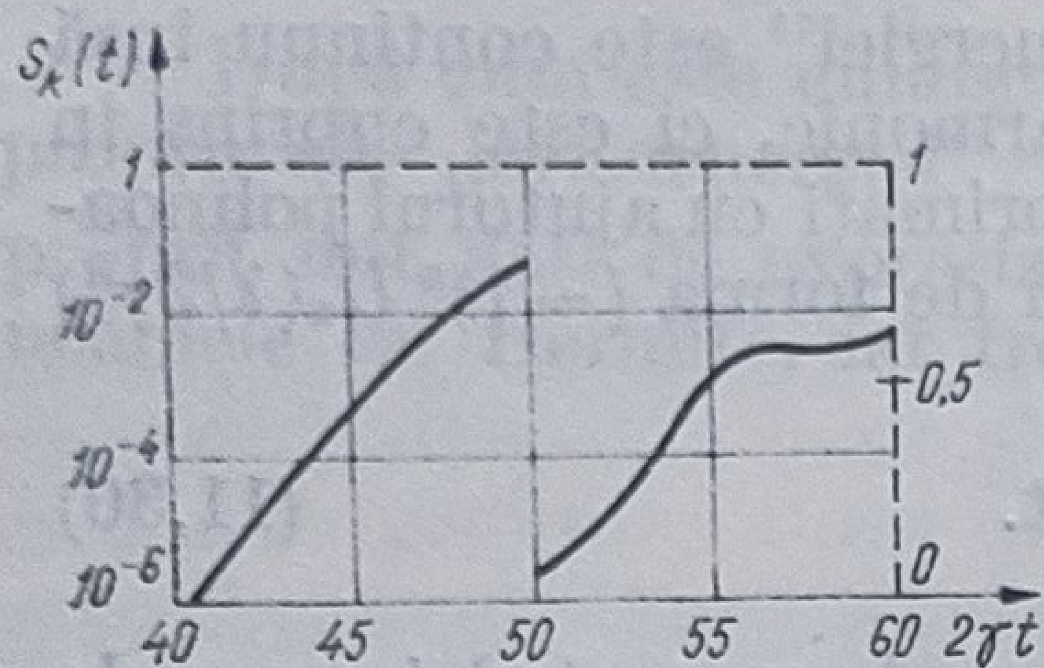


Fig. 11.3

12.2.3 Sisteme cu un număr infinit de nivele caracterizate de momente de dipol variabile

În cazul unui sistem cu un număr infinit de nivele cu momente de dipol variabile, frecvenţele Rabi scad după legea

$$\gamma_n^R = \gamma^R(n+1)^{-1/2} \tag{15.36}$$

şi se poate obţine o soluţie analitică pentru amplitudinile de probabilitate cu ajutorul polinoamelor lui Charlier $C_{m-1}(n\,;\,m)$. Spectrul în acest caz este discret şi este determinat de valorile proprii ale „cvasienergiei" [134].

$$\lambda_{(\pm m)} = \pm\, \gamma^R(m)^{-1/2} \quad (m = 1,2,\ldots). \tag{11.37}$$

Vectorii proprii sînt daţi de expresii de forma: $(\pm 1)^n[(n+1) \times \times m^n/n!]\ C_{m-1}(n\,;\,m)$. Factorii de normare pot fi obţinuţi cu ajutorul relaţiilor de ortogonalitate pe care le verifică polinoamele lui Charlier

$$\sum_{n=0}^{\infty} \frac{n+1}{n!} m^n [C_{m-1}(n\,;\,m)]^2 = 2e^m\, m^{1-m} m!. \tag{1.38}$$

Ţinînd seama de condiţiile iniţiale (11.21) expresia amplitudinii de probabilitate $C_n(t)$ devine

$$C_n(t) = i^n \left(\frac{n+1}{n!}\right)^{1/2} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{m^{m-1+\frac{n}{2}}}{m!} e^{-m}\, C_{m-1}(n\,;\,m) \cdot \cos\left(\frac{\gamma_t^R}{m^{1/2}} - \frac{n\pi}{2}\right). \tag{11.39}$$

Întrucît spectrul cvasienergetic al sistemului considerat este discret, amplitudinea probabilităţii nu tinde la zero cu creşterea timpului. Mediind funcţia de distribuţie pentru un interval de timp infinit se poate obţine media populaţiilor pe diferite nivele

$$V_n = \lim_{T\to\infty} \frac{1}{T}\int_0^T C_n^*(t) C_n(t)\mathrm{d}t = \frac{1}{2}\,\frac{n+1}{n!} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{m^{2m-2+n}}{(m!)^2} e^{-2m}[C_{m-1}(m\,;\,n)]^2. \tag{11.40}$$

Analizînd relaţia (11.40) se constată că scăderea populaţiilor pe diferite nivele caracterizate de numere cuantice mari este lentă. Se constată de asemenea o inversie între populaţiile nivelelor caracterizate de numerele 0 şi 1 (tabelul 11.1).

Tabelul 11.1

n	0	1	2	3	4	5
V_n	0,08	0,15	0,1	0,07	0,05	0,04

11.2.4. Sisteme cu un număr finit N de nivele caracterizate prin momente de dipol constante

Soluţia sistemului cu un număr finit N de nivele reprezintă un caz particular al soluţiei sistemului cu un număr infinit de nivele prezentat anterior în paragraful 11.2.2. Spectrul energetic este discret, iar valorile proprii ale „cvasienergiei'' [133]

$$\lambda_m = -2\gamma^R \cos\left(\frac{m\pi}{N+1}\right) \quad (m = 1,2,\ldots, N) \tag{11.41}$$

sînt determinate de condiţia

$$C_N = 0 \text{ sau } U_N(\lambda/2\gamma^R) = 0. \tag{11.42}$$

Folosind relaţiile de normare a vectorilor proprii,

$$\sin\left[\frac{(n+1)m\pi}{N+1}\right] \sin\left(\frac{m\pi}{N+1}\right), \tag{11.43}$$

se poate obţine o soluţie analitică care satisface condiţiile iniţiale, de forma

$$C_n(t) = \frac{2}{N+1} \sum_{m=1}^{N} \sin\left(\frac{m\pi}{N+1}\right) \sin\left[\frac{(n+1)m\pi}{N+1}\right] \times$$
$$\times \exp\left[2i\gamma^R t \cdot \cos\left(\frac{m\pi}{N+1}\right)\right]. \tag{11.44}$$

Cu ajutorul expresiei amplitudinii de probabilitate se poate calcula media populaţiilor pe diferite nivele

$$V_N = \frac{1}{N+1} \quad \text{pentru } n \neq 0,\ N-1 \tag{11.45}$$

şi

$$V_{N-1} = V_0 = \frac{3}{2(N+1)}. \tag{11.46}$$

Se constată că în acest caz media populaţiilor este aceeaşi pentru toate nivelele cu excepţia celui fundamental şi al ultimului nivel excitat. Aceste valori corespund regimului de stare staţionară caracteristic micilor oscilaţii ale populaţiei.

Utilizînd relaţia (11.29) se poate calcula populaţia totală a nivelelor superioare $S_{N/2}(t)$, pentru care este îndeplinită condiţia $\frac{N}{2} \leqslant n \leqslant N-1$ iar dependenţa ei de timp este prezentată în fig. 11.4.

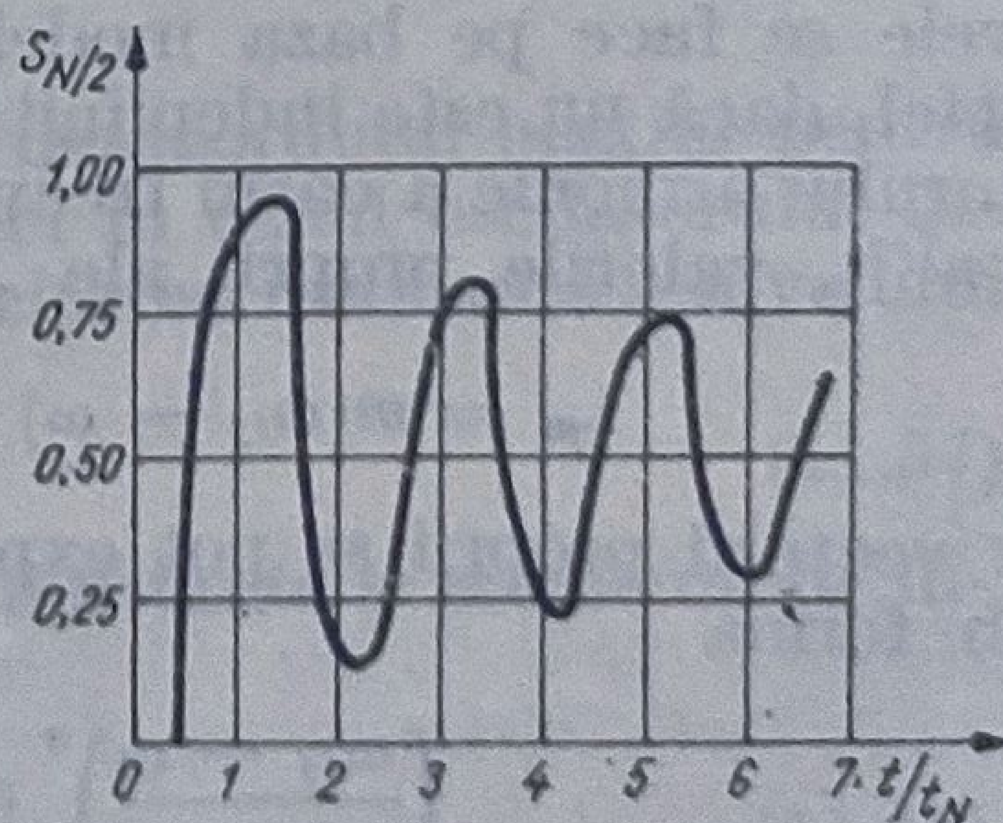


Fig. 11.4

Pe baza modelului prezentat în lucrarea [128] se poate calcula timpul necesar pentru atingerea stării de echilibru care este cu un ordin de mărime mai mare decît timpul necesar populării ni-

velelor superioare

$$t_N \sim \frac{N}{2\gamma^R}. \tag{11.47}$$

Un rol important în dinamica fenomenelor de excitare rezonantă în treaptă a unui sistem cu un număr finit de nivele caracterizate de momente de dipol constante îl joacă inserarea în succesiunea de tranziții, a uneia caracterizată de un moment de dipol diferit de cele ale sistemului. Variația momentului de dipol corespunzătoare unei singure tranziții conduce la o schimbare considerabilă a populațiilor pe diferite nivele și acționează ca o barieră în procesul de excitare a celorlalte nivele [128].

Astfel, dacă se consideră că tranziția de pe nivelul fundamental $|0\rangle$ pe primul nivel excitat $|1\rangle$ are loc la rezonanță, sub acțiunea unui cîmp intens, în urma acestei interacții are loc despicarea nivelului $|1\rangle$, obținîndu-se două sau mai multe stări care au „cvasienergii" diferite ca în fig. 11.5. Despicarea nivelului $|1\rangle$ face ca tranziția mai puțin intensă $|1\rangle \to |2\rangle$ să nu mai aibă loc la rezonanță, iar dezacordul astfel introdus poate fi compensat numai prin schimbarea frecvenței radiației laser excitatoare.

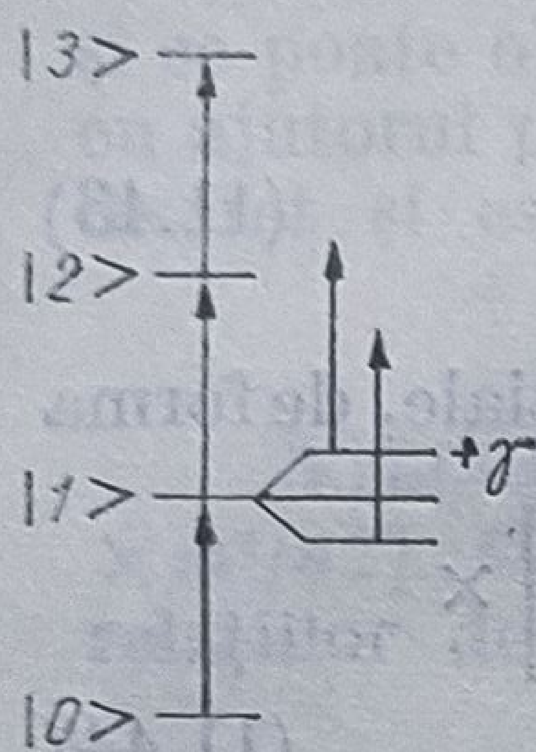


Fig. 11.5

În cazul inserării unei tranziții mai puțin intense, într-o secvență de tranziții intense, conform modelului teoretic prezentat în lucrarea [128] modificarea populațiilor nivelelor implicate nu este chiar atît de mare ca în cazurile prezentate anterior și funcție de condițiile de excitare, ratele de dezexcitare ale amplitudinilor de probabilitate pot fi mărite sau micșorate.

Mărimea intensității cîmpului sub acțiunea căruia au loc tranzițiile, jocă un rol important cînd se studiază fenomenele rezonante. Astfel, chiar dacă între frecvența cîmpului excitator ω și frecvența de tranziție ω_{ij} între două nivele există un dezacord, fenomenul de rezonanță poate avea loc dacă nivelele sînt lărgite datorită intensității radiației, iar această lărgire compensează dezacordul dintre frecvențe. Pentru aceasta, trebuie ca frecvența Rabi să fie mai mare sau egală cu dezacordul corespunzător frecvențelor

$$2\gamma_{ij}^R = \left(\frac{E}{\hbar}\right) |\langle i|d|j\rangle| \geqslant |\omega - \omega_{ji}|. \tag{11.48}$$

Calculul amplitudinilor de probabilitate și al populațiilor diferitelor nivele se face pe baza modelului prezentat la paragrafele 11.1 și 11.2. Astfel, dacă nu este îndeplinită exact condiția de rezonanță, în cazul oscilatorului armonic a cărui frecvență Rabi crește proporțional cu $n^{1/2}$ ($\gamma_n^R \sim \sim n^{1/2}$), valorile proprii ale „cvasienergiei" sînt

$$\lambda_m = m(\omega_{ij} - \omega) + (\gamma^R)^2/(\omega - \omega_{ij}) \quad (m = 0,1,\ldots) \tag{11.49}$$

iar vectorii proprii se pot exprima cu ajutorul polinoamelor lui Laguerre sub forma

$$\left(\frac{\omega_{ij} - \omega}{\gamma^R}\right)^n (n!)^{1/2} L_n^{m-n}\left[\left(\frac{\gamma^R}{\omega_{ij} - \omega}\right)\right]^2. \tag{11.50}$$

Pe baza modelului prezentat în § 11.1, 11.2, cu condițiile inițiale (11.21), expresia amplitudinii de probabilitate $C_n(t)$ este

$$C_n(t) = \left(\frac{\omega - \omega_{ij}}{\gamma^R}\right)^n (n\,!)^{1/2} \exp\left[-\mathrm{i}\frac{(\gamma^R)^2}{\omega - \omega_{ij}}t - \left(\frac{\gamma^R}{\omega - \omega_{ij}}\right)^2\right] \times$$
$$\times \sum_{m=0}^{\infty} \frac{1}{m\,!}\left[\left(\frac{\gamma^R}{\omega - \omega_{ij}}\right)^2 \exp\left(\mathrm{i}(\omega - \omega_{ij})t\right)\right]^m L_n^{m-n}\left[\left(\frac{\gamma^R}{\omega - \omega_{ij}}\right)^2\right]. \tag{11.51}$$

În urma operației de însumare expresia amplitudinii de probabilitate $C_n(t)$ devine

$$C_n(t) = (n\,!)^{-1/2}\left\{\frac{\gamma^R}{\omega - \omega_{ij}}\left[\exp\left(\mathrm{i}(\omega - \omega_{ij})t\right) - 1\right]\right\}^n \times$$
$$\times \exp\left\{-\mathrm{i}\frac{(\gamma^R)^2}{\omega - \omega_{ij}}t + \left(\frac{\gamma^R}{\omega - \omega_{ij}}\right)^2\left[\exp\left(\mathrm{i}(\omega - \omega_{ij})t\right) - 1\right]\right\}. \tag{11.52}$$

În cazul rezonanței ($\omega = \omega_{ij}$), relația (11.52) se transformă în (11.25). Populația nivelului n poate fi calculată cu ajutorul expresiei amplitudinii de probabilitate $C_n(t)$, obținîndu-se o distribuție de tip Poisson

$$C_n^* C_n = (n\,!)^{-1}\ [\overline{n}(t)^n]\ \exp\ [-\overline{n}(t)]. \tag{11.53}$$

În relația (11.53)

$$\overline{n}(t) = 2\left(\frac{\gamma^R}{\omega - \omega_{ij}}\right)^2 [1 - \cos(\omega - \omega_{ij})t] \tag{11.54}$$

reprezintă numărul mediu de fotoni absorbiți. Se observă că numărul mediu de fotoni oscilează între zero și o valoare maximă

$$n_{\max} = 4\left(\frac{\gamma^R}{\omega - \omega_{ij}}\right)^2 \tag{11.55}$$

și nu devine infinit cînd $t \to \infty$ ca în cazul rezonanței. Astfel, în cazul oscilatorului armonic, excitarea efectivă a nivelului n, poate avea loc în treaptă, la rezonanță, dacă între frecvența Rabi și dezacordul frecvențelor $(\omega - \omega_{ij})$ este îndeplinită condiția

$$\left|\frac{\gamma^R}{\omega - \omega_{ij}}\right| \geqslant \frac{n^{1/2}}{2}. \tag{11.56}$$

Dacă se definește prin Δn valoarea absolută a dezacordului maxim pentru care excitarea nivelului este apreciabilă, atunci în cazul oscilatorului armonic, între Δn și timpul t_n necesar pentru excitarea rezonantă a nivelului n există relația

$$\Delta n \cdot t_n \simeq 2. \tag{11.57}$$

Pentru un sistem cu mai multe nivele echidistante și momente de dipol egale, valoarea dezacordului maxim este

$$\Delta n \simeq \frac{4\gamma^R}{n}. \tag{11.58}$$

În cazul general, cînd nivelele nu mai sînt echidistante, intensitatea cîmpului exterior sub acţiunea căruia au loc tranziţiile trebuie să fie limitată inferior conform relaţiei (11.48), iar amplitudinile de probabilitate $C_n(t)$ se obţin sub forma [128]

$$C_n(t) = \mathrm{i}^n \exp\left[\frac{\mathrm{i}}{2} n(\omega_{ij} - \omega)t\right] J_n\left[\frac{4\gamma^R}{\omega_{ij} - \omega} \sin\left(\frac{\omega_{ij} - \omega}{2}\right)t\right]. \quad (11.59)$$

11.3. Interacţia cvasirezonantă dintre radiaţia laser şi un sistem cu mai multe nivele energetice neechidistante. Rezonanţe multifotonice în sisteme moleculare

În cazul real, nivelele energetice ale unei molecule nu sînt echidistante din cauza anarmonicităţii vibraţiilor şi mişcării de rotaţie. Ca urmare, frecvenţele corespunzătoare tranziţiilor dintre două nivele de vibraţie succesive sînt diferite. Studiul interacţiei cvasirezonante dintre radiaţia laser şi un sistem cu mai multe nivele energetice neechidistante, explică fenomenele de excitare a moleculelor poliatomice pe diferite nivele şi chiar disocierea lor, atunci cînd se folosesc pentru excitare laseri de mică putere.

Fenomenul de excitare a unui sistem cu mai multe nivele energetice dispuse aproape echidistant mai poate fi tratat utilizînd acelaşi model ca şi în cazul sistemului cu nivele echidistante prezentat la paragraful 11.2, dacă intensitatea radiaţiei sub acţiunea căreia au loc tranziţiile este suficient de mare. Cu toate acestea, modelul prezentat anterior nu poate fi aplicat la studiul sistemelor cu nivele energetice neechidistante care sînt excitate cu radiaţii laser de putere mică sau moderată.

Fenomene de rezonanţă înguste care implică N fotoni (rezonanţe multifotonice) pot fi obţinute în cazul moleculelor dacă sistemul execută o tranziţie de pe nivelul fundamental pe un nivel excitat în urma absorbţiei simultane a celor N cuante, fără ca tranziţia pe unul din nivelele intermediare să fie rezonantă. Un astfel de fenomen de rezonanţă cu N fotoni poate fi descris într-o aproximaţie destul de bună cu ajutorul unor ecuaţii similare cu cele care descriu excitarea cu un singur foton a unui sistem cu două nivele energetice. Considerînd că momentele de dipol corespunzătoare diferitelor tranziţii intermediare au acelaşi ordin de mărime şi că nu există tranziţii rezonante pe nivelele intermediare, se poate demonstra că frecvenţa Rabi corespunzătoare celor N fotoni este mult mai mică decît cea corespunzătoare unui singur foton. Deci, timpul necesar populării nivelului rezultat prin absorbţia celor N fotoni este de acelaşi ordin de mărime cu inversul frecvenţei Rabi corespunzătoare $(\gamma^R_{(N)})^{-1}$ şi este mult mai mare decît timpul necesar populării unui nivel în urma rezonanţei cu un foton.

Pentru a calcula frecvenţa Rabi corespunzătoare tranziţiei care implică N fotoni se neglijează degenerarea nivelelor şi se consideră că nici unul din nivelele intermediare j nu participă la rezonanţă, deci

$$|\delta_j| \gg \gamma^R_j \text{ pentru } j = 1, \ldots, N-1 \quad (11.60)$$

unde γ_j^R reprezintă frecvenţa Rabi pentru tranziţia $j \to j+1$, iar

$$\delta_j = \frac{\hbar j\omega - E_j}{\hbar} \tag{11.60'}$$

este dezacordul aceleiaşi tranziţii.

De asemenea, se consideră că procesul de excitare al moleculei de pe nivelul $N-1$ pe nivelul N are loc la rezonanţă, adică

$$|\delta_{N-1}| \leqslant \gamma_{N-1}^R. \tag{11.61}$$

Pe baza modelului prezentat în lucrarea [128], ecuaţiile de mişcare care descriu procesul de excitare pentru primul nivel sînt

$$\frac{dC_0}{dt} = i\gamma_1^R C_1 \tag{11.62}$$

$$\frac{dC_1}{dt} = i\delta_1 C_1 + i\,\gamma_1^R C_0 + i\gamma_2^R C_2. \tag{11.63}$$

Soluţia aproximativă a acestui sistem

$$C_1(t) = \frac{\gamma_1^R}{\delta_1}[1 - \exp(-i\delta_1 t)]\, C_0(t) \tag{11.64}$$

este formată din doi termeni : primul care variază lent în timp şi al doilea care variază rapid. Considerînd neglijabilă contribuţia celui de-al doilea termen şi o variaţie lentă în timp a amplitudinii $C_0(t)$, expresia amplitudinii de probabilitate C_1 devine

$$C_1(t) \simeq \frac{\gamma_1^R}{\delta_1} C_0(t). \tag{11.65}$$

Continuînd acest procedeu în treaptă, se poate obţine ecuaţia de mişcare a amplitudinii de probabilitate C_N, corespunzătoare ultimului nivel excitat prin absorbţia a N fotoni

$$\frac{dC_N}{dt} = i\delta_N C_N + i\gamma_N^R \frac{\gamma_{N-1}^R}{\delta_{N-1}} \cdots \frac{\gamma_1^R}{\delta_1} C_0 \tag{11.66}$$

şi analog expresia frecvenţei Rabi corespunzătoare

$$\gamma_{(N)}^R = \gamma_N^R \left|\frac{\gamma_{N-1}^R}{\delta_{N-1}}\right| \cdots \left|\frac{\gamma_1^R}{\delta_1}\right|. \tag{11.67}$$

Dacă dezacordul frecvenţelor δ_N este mic în comparaţie cu frecvenţa Rabi corespunzătoare absorbţiei a N fotoni, adică

$$|\delta_N| \ll |\gamma_{(N)}^R| \tag{11.68}$$

atunci amplitudinea de probabilitate C_N devine comparabilă în mărime cu C_0 şi este mult mai mare decît amplitudinile de probabilitate ale nivelelor intermediare, iar intervalul de timp după care mărimea lui C_N devine apreciabilă este $[\gamma_{(N)}^R]^{-1}$. Din analiza relaţiilor (11.60) şi (11.67) rezultă că

perioada Rabi pentru N fotoni este mult mai mare decît perioada Rabi pentru un singur foton

$$[\gamma^{R}_{(N)}]^{-1} \gg [\gamma^{R}_{N}]^{-1}. \tag{11.69}$$

Deci ecuaţia (11.66) descrie un fenomen de rezonanţă îngustă care se dezvoltă încet în timp şi în care populaţia sistemului este supusă unor tranziţii ciclice între nivelele $|0\rangle$ şi $|N\rangle$ cu frecvenţa $2\gamma^{R}_{(N)}$.

Dacă dezacordul corespunzător unui nivel intermediar j devine comparabil cu frecvenţa Rabi corespunzătoare

$$|\delta_j| \geqslant |\gamma^{R}_{j}| \tag{11.70}$$

atunci amplitudinile de probabilitate ale nivelelor intermediare C_j devin comparabile cu cele corespunzătoare nivelului fundamental C_0 şi ultimului nivel excitat C_N, iar frecvenţa Rabi $\gamma^{R}_{(N)}$ creşte foarte mult. În acest caz tranziţiile ciclice pe care populaţia sistemului le execută între nivelele $|0\rangle$ şi $|N\rangle$ devin aperiodice.

O altă condiţie care mai trebuie îndeplinită pentru a rezolva ecuaţia (11.66) este

$$|C_{N-1}| \ll |C_{N-2}| \ll \ldots \ll |C_1| \ll |C_0|. \tag{11.71}$$

La momentul iniţial această condiţie poate fi îndeplinită, însă la un moment oarecare de timp t, din cauza cuplării nivelelor adiacente prin intermediul ecuaţiei lui Schrödinger amplitudinea $|C_N|$ devine comparabilă cu $|C_0|$ şi deci $|C_{N-1}|$ nu poate rămîne cea mai mică. Aceste neconcordanţe scot în evidenţă faptul că expresia obţinută pentru frecvenţa Rabi corespunzătoare absorbţiei a N fotoni nu este întotdeauna corectă, ea reprezentînd de fapt rata iniţială de variaţie a amplitudinii de probabilitate C_N cînd $C_0 \simeq 1$. În plus, metodele aproximative folosite pentru obţinerea de soluţii analitice trebuie îmbunătăţite pentru descrierea sistemelor reale.

11.4. Evaluarea numerică a amplitudinilor de probabilitate şi a populaţiilor nivelelor

Metodele aproximative folosite pentru obţinerea de soluţii analitice, prezentate la paragrafele anterioare nu pot fi aplicate la studiul unor sisteme mai complicate, ca de exemplu : cele care au nivelele energetice degenerate, cele care prezintă un dezacord mare între frecvenţa radiaţiei laser de pompaj şi frecvenţele de tranziţie $(\omega_j - \bar{\omega}_{j-1})$ dintre două nivele nedegenerate şi atunci cînd frecvenţele Rabi nu îndeplinesc anumite condiţii limitative.

Astfel, aproximaţia „cvasienergetică" poate fi aplicată numai dacă amplitudinea cîmpului electric rămîne constantă în timp şi cu ajutorul ei poate fi calculată dependenţa de timp a amplitudinilor de probabilitate şi a populaţiilor, precum şi media lor pe o perioadă mult mai mare decît cea corespunzătoare frecvenţelor Rabi pentru un foton sau mai mulţi fotoni.

Dependenţa populaţiei de timp mai poate fi obţinută şi prin diagonalizarea unei matrice pătratice cu N elemente, unde N reprezintă numărul de nivele energetice, fără să fie necesară impunerea unor restricţii legate de condiţiile iniţiale sau de intervalele de timp. Această metodă este mai

des utilizată decît integrarea în etape a ecuației lui Schrödinger care este laborioasă și cere diferite seturi de condiții inițiale. Integrarea în etape a ecuației lui Schrödinger se folosește atunci cînd amplitudinea cîmpului electric depinde de timp și există un dezacord între frecvența radiației laser și frecvențele de tranziție.

Pentru a calcula dependența de timp a amplitudinii de probabilitate a unui sistem cu nivelele degenerate $c_{ns}(t)$ se introduce un operator de evoluție temporală $U^S(t_2, t_1)$ cu ajutorul căruia se poate exprima dependența vectorului de stare al sistemului la momentul t_2 funcție de vectorul de stare la momentul t_1, în reprezentarea Schrödinger, cu relația

$$|\psi^S(t_2)\rangle = U^S(t_2, t_1)\,|\psi^S(t_1)\rangle. \tag{11.72}$$

Dacă operatorul U^S este cunoscut și se consideră că la momentul inițial sistemul se află în stare fundamentală

$$\langle ms|\psi^S(0)\rangle = \delta_{m0} \tag{11.73}$$

atunci populația nivelului ns este dată de relația :

$$|\langle ns|\psi^S(t)\rangle|^2 = |\langle ns|\,U^S(t, 0)\,|mq\rangle|^2. \tag{11.74}$$

De fapt, pătratul valorii absolute a fiecărui element de matrice al operatorului U^S reprezintă probabilitatea $P(ns, t_2|mq, t_1)$ ca sistemul să se găsească într-o anumită stare finală $|ns\rangle$ la momentul t_2, ținînd seama că la momentul t_1, se afla în altă stare $|mq\rangle$

$$P(mq, t_2|ns, t_1) = |\langle ns|\,U^S(t_2, t_1)\,|mq\rangle|^2. \tag{11.75}$$

Pentru pulsuri a căror durată este mult mai mare decît perioada Rabi pentru unul sau mai mulți fotoni, media temporală a probabilității se definește astfel

$$\overline{P}(ns|mq) = \lim_{T\to\infty} T^{-1}\int_0^T P(ns, t'|mq, 0)\,dt'. \tag{11.76}$$

Ecuațiile de mișcare pentru amplitudinile de probabilitate pot fi deduse cu ajutorul ecuației temporale a lui Schrödinger

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}|\psi^S(t)\rangle = H^S|\psi^S(t)\rangle. \tag{11.77}$$

Elementele de matrice ale hamiltonianului H^S care nu se anulează sînt

$$\langle ns|H^S|ns\rangle = \hbar\omega_{ns} \tag{11.78}$$

$$\langle ns|H^S|n-1, q\rangle = -\langle ns|d|n-1, q\rangle E\cos\omega t.$$

Ținînd seama că în reprezentarea Schrödinger expresia vectorului de stare este

$$|\psi^S(t)\rangle = \sum_{ns} a^S_{ns}(t)\,|n\rangle \tag{11.79}$$

în reprezentarea de interacție aceasta poate fi obținută cu ajutorul unui operator unitar $V(t)$ sub forma

$$|\psi^I(t)\rangle = \hat{V}(t)\,|\psi(t)\rangle \tag{11.80}$$

unde

$$V(t) = \sum_{mq} | mq\rangle e^{im\omega t} \langle mq | = \exp\left(\frac{i}{\hbar} H_0 t\right) \tag{11.81}$$

iar

$$H_0 = \sum_{mq} \hbar | mq\rangle m\omega \langle mq |. \tag{11.82}$$

În reprezentarea de interacţie ecuaţia lui Schrödinger devine

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} | \psi^I(t)\rangle = H^{ef} | \psi^I(t)\rangle \tag{11.83}$$

iar hamiltonianul efectiv H^{ef} în aceeaşi reprezentare este

$$H^{ef} = V(t) H^S V(t)^+ - H_0. \tag{11.84}$$

Atît elementele de matrice diagonale ale hamiltonianului H^{ef}

$$\langle ns | H^{ef} | ns\rangle = \hbar(\omega_{ns} - n\omega) \tag{11.85}$$

cît şi cele nediagonale diferite de zero

$$\langle ns | H^{ef} | n-1,\ q\rangle = -\hbar\gamma_{ns,\ (n-1)q} \tag{11.86}$$

sînt independente de timp.

Operatorul de evoluţie temporală în reprezentarea de interacţie satisface ecuaţia

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t_2} U^I(t_2,\ t_1) = H^{ef} U^I(t_2,\ t_1) \tag{11.87}$$

a cărei soluţie este

$$U^I(t_2,\ t_1) = \exp\left[\frac{i}{\hbar} H^{ef}(t_2 - t_1)\right]. \tag{11.88}$$

Folosind relaţiile (11.79), (11.80) şi (11.87) se poate demonstra că operatorul unitar de evoluţie temporală în cele două reprezentări satisface relaţia

$$U^S(t_2,\ t_1) = V(t_2)^+ U^I(t_2,\ t_1) V(t_1). \tag{11.89}$$

De asemenea, se poate obţine ecuaţia seculară pentru hamiltonianul efectiv H^{ef} sub forma

$$\sum_{mq} \langle ns | H^{ef} | mq\rangle P_{mq}(\lambda) = \lambda P_{ns}(\lambda) \tag{11.90}$$

unde $P_{mq}(\lambda)$ sînt componentele stării „cvasienergetice'' $|\lambda\rangle$ determinate de vectorii de bază $|mq\rangle$. Ţinînd seama de expresia operatorului de evoluţie temporală în reprezentarea de interacţie

$$U^I(t_2,\ t_1) = \sum_{\lambda} | \lambda\rangle \exp\left[-i\lambda(t_2,\ t_1)\right] \langle\lambda | \tag{11.91}$$

și de relația (11.89) amplitudinile de probabilitate devin

$$c_{ns}(t_2) = \langle n | \psi^I(t_2) \rangle =$$

$$= \sum_{\lambda} P_{ns}(\lambda) e^{-i\lambda(t_2 - t_1)} \langle \lambda | \psi^I(t_1) \rangle =$$

$$= \sum_{\lambda mq} P_{ns}(\lambda) \, e^{-i\lambda(t_2 - t_1)} P_{mq}(\lambda) a_{mq}(t). \tag{11.92}$$

Cu ajutorul amplitudinilor $c_{ns}(t_2)$ se poate calcula probabilitatea ca la momentul t_2 sistemul să se afle în starea $|n\rangle$ știind că la momentul t_1 el se găsește în starea $|m\rangle$

$$P(ns, \ t_2 | \ mq, \ t_1) = | \sum_{\lambda} P_{ns}(\lambda) \ P_{mq}(\lambda) \ \exp[-i\lambda(t_2 - t_1)] |^2 \tag{11.93}$$

precum și media temporală a acestei probabilități

$$\bar{P}(ns \ | \ mq \ ; \ \omega) = \sum_{\lambda} | \ P_{ns}(\lambda) \ P_{mq}(\lambda) \ |^2. \tag{11.94}$$

Evaluarea numerică a probabilității se poate face cu ajutorul calculatorului, pentru valori arbitrare ale diferenței $t_2 - t_1$, în diferite cazuri particulare. Astfel, în cazul oscilatorului armonic cu nivele nedegenerate caracterizat de frecvențele de tranziție

$$\omega_n = n\omega + n(n-1)\chi \tag{11.95}$$

(χ fiind coeficientul de anarmonicitate) și de frecvențele Rabi corespunzătoare unui singur foton

$$\gamma_n^R = \frac{d\sqrt{n}}{2\hbar} \tag{11.96}$$

media populației funcție de frecvența laserului ω și de timpul $t = t_2 - t_1$, considerînd că la momentul inițial sistemul se afla în starea fundamentală, $m=0$, este prezentată în fig. 11.6 și 11.7 pentru diferite valori ale intensității cîmpului electric excitator: $dE_0/(2\hbar c) = 0{,}1 \ \text{cm}^{-1}$, fig. 11.6, a, $dE_0/(2\hbar c) = 0{,}3 \ \text{cm}^{-2}$, fig. 11.6, b, $dE_0/(2\hbar c) = 1 \ \text{cm}^{-1}$, fig. 11.6 c, $dE_0/(2\hbar c) = 3 \ \text{cm}^{-1}$, fig. 11.6 d și $dE_0/(2\hbar c) = 10 \ \text{cm}^{-1}$, fig. 11.6, e. Pentru frecvențele Rabi s-au considerat următoarele valori ale lui n: $n = 0$ (curba —), $n = 1$ (curba . . . . .), $n = 2$ (curba — — —), $n = 3$ (curba —. —.—), iar pentru timp s-a reprezentat populația pe durata a 8 perioade Rabi (fig. 11.7 a—e).

Frecvența de rezonanță care implică absorbția a N fotoni din starea fundamentală cu $n = 0$ în starea excitată cu $n = N$ fiind [136]

$$\omega^{(N)} = \omega + (N-1)\chi \tag{11.97}$$

se pot obține mai multe rezonanțe succesive cu participarea mai multor fotoni. Curbele prezentate în fig. 11.6 și 11.7 [128] au fost trasate pentru parametri corespunzători moleculei de hexaflorură de sulf (considerată biatomică) pentru care $\omega = 948 \ \text{cm}^{-1}$; $\chi = -2{,}54 \ \text{cm}^{-1}$ [136] în cazul absorbției rezonante a 1, 2 și 3 fotoni, iar diagonalizarea numerică a hamiltonianului efectiv a fost făcută pentru o bază de vectori $|m\rangle$ cu $m \in [0, 9]$. Din fig. 11.6, a se poate observa că pentru valori mici ale intensității cîmpului, nivelul fundamental și primul nivel vibrațional excitat au aceeași

comportare ca în cazul unui sistem cuantic cu două nivele la rezonanță pentru care $\overline{P}(1|0) = \overline{P}(0|0) = \frac{1}{2}$ $(\omega = 948\ \text{cm}^{-1})$.

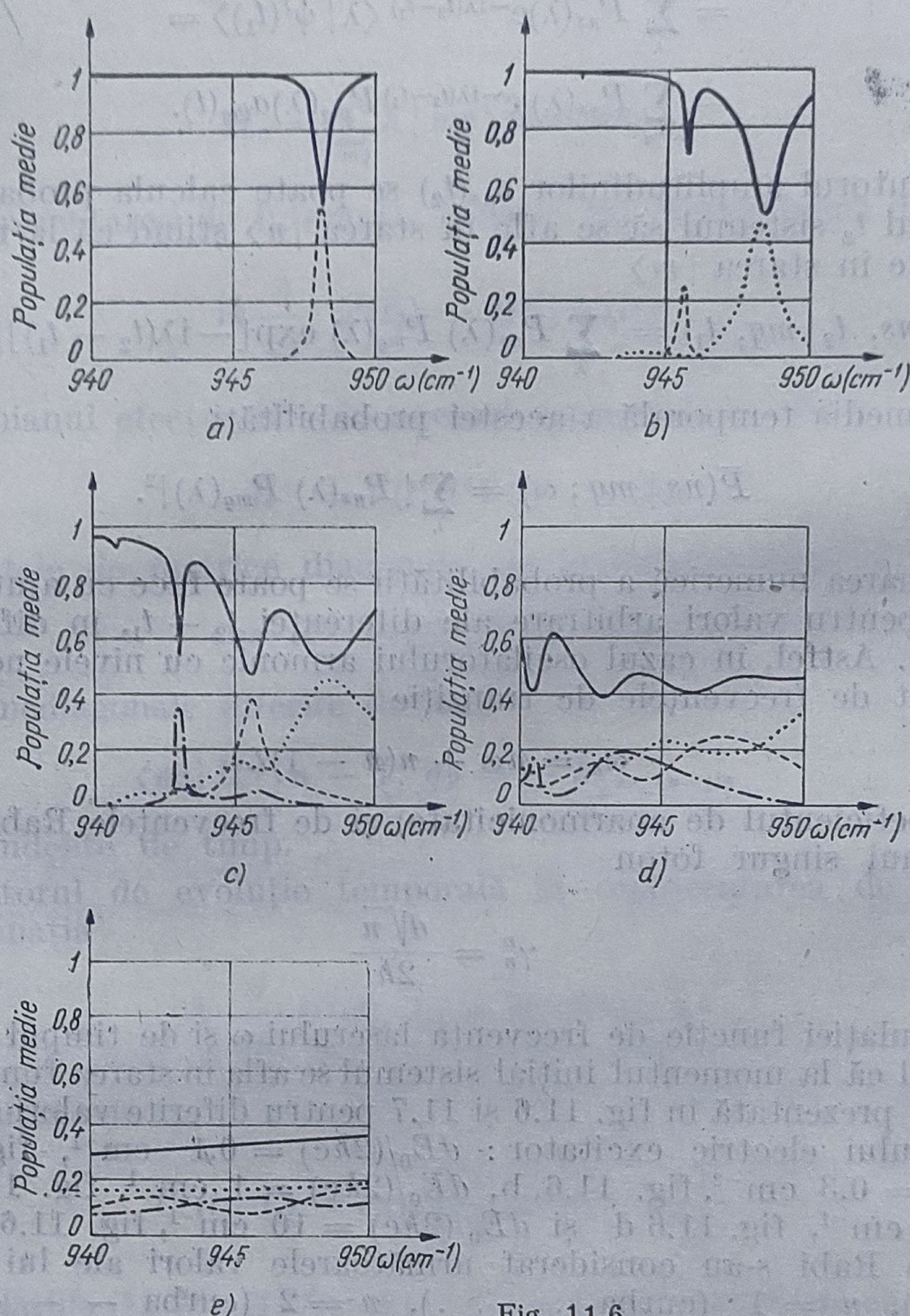


Fig. 11.6

O dată cu creșterea intensității cîmpului se obțin rezonanțe cu 1, 2 și 3 fotoni fig. 11.6 b, c la frecvențe date de relația $\omega^{(N)} = \omega - (N-1)\chi$. Dacă intensitatea cîmpului este mare se produce o lărgire apreciabilă a nivelelor ceea ce conduce la dispariția fenomenului de rezonanță (fig. 11.6 d, e).

În cazul dependenței populației de timp se constată o comportare asemănătoare. Pentru valori mici ale cîmpului, oscilațiile populațiilor sînt periodice ca în cazul sistemului cu două nivele, cu frecvența Rabi corespunzătoare unui singur foton (fig. 11.7 a, b), iar pentru intensități mari ale cîmpului oscilațiile devin aperiodice. „Cvasiperioada'' care poate fi pusă în evidență în cazul figurilor 11.7 b—e caracterizează timpul necesar ca „unda'' excitatoare să treacă de pe nivelul fundamental $(m = 0)$ pe celelalte nivele excitate.

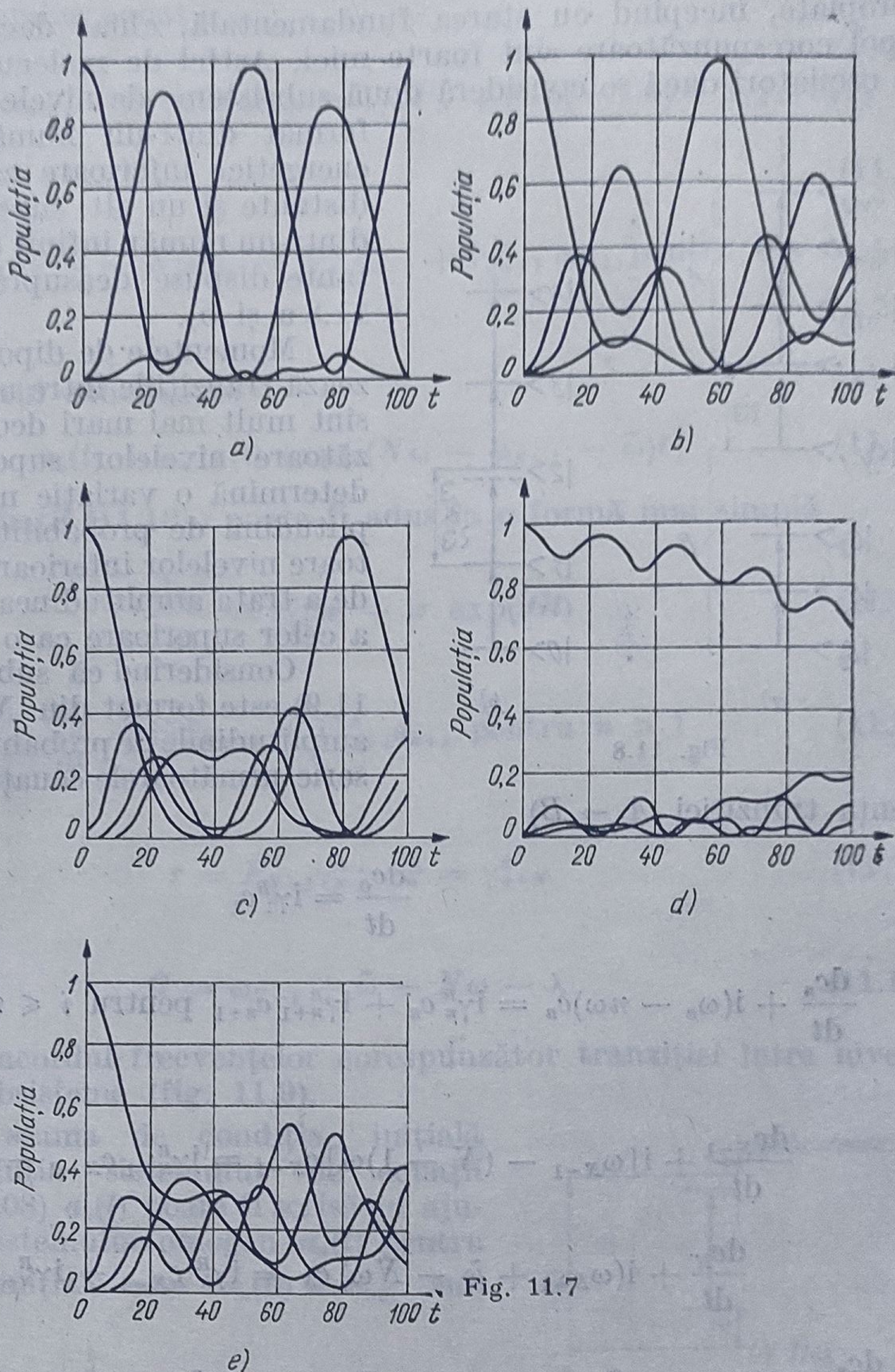


Fig. 11.7

11.5. Metode aproximative folosite pentru descrierea sistemelor de tip oscilator

Tranzițiile optice permise între diferite nivele, precum și dezacordul dintre frecvența radiației excitatoare și cea corespunzătoare unei tranziții sînt afectate de despicarea nivelelor degenerate în urma vibrațiilor anarmonice ale moleculelor poliatomice. Întrucît densitatea de stări vibraționale crește foarte mult o dată cu creșterea energiei unei molecule poliatomice se obțin o mulțime de tranziții între diferite nivele de vibrație foarte

apropiate, începînd cu starea fundamentală, chiar dacă momentele de dipol corespunzătoare sînt foarte mici. Astfel de molecule pot fi tratate ca oscilatori dacă se consideră două subsisteme de nivele : un subsistem B format dintr-un număr mic de nivele energetice inferioare care nu sînt echidistante şi un alt subsistem A format dintr-un număr infinit de nivele echidistante dispuse deasupra primelor (fig. 11.8 a şi b).

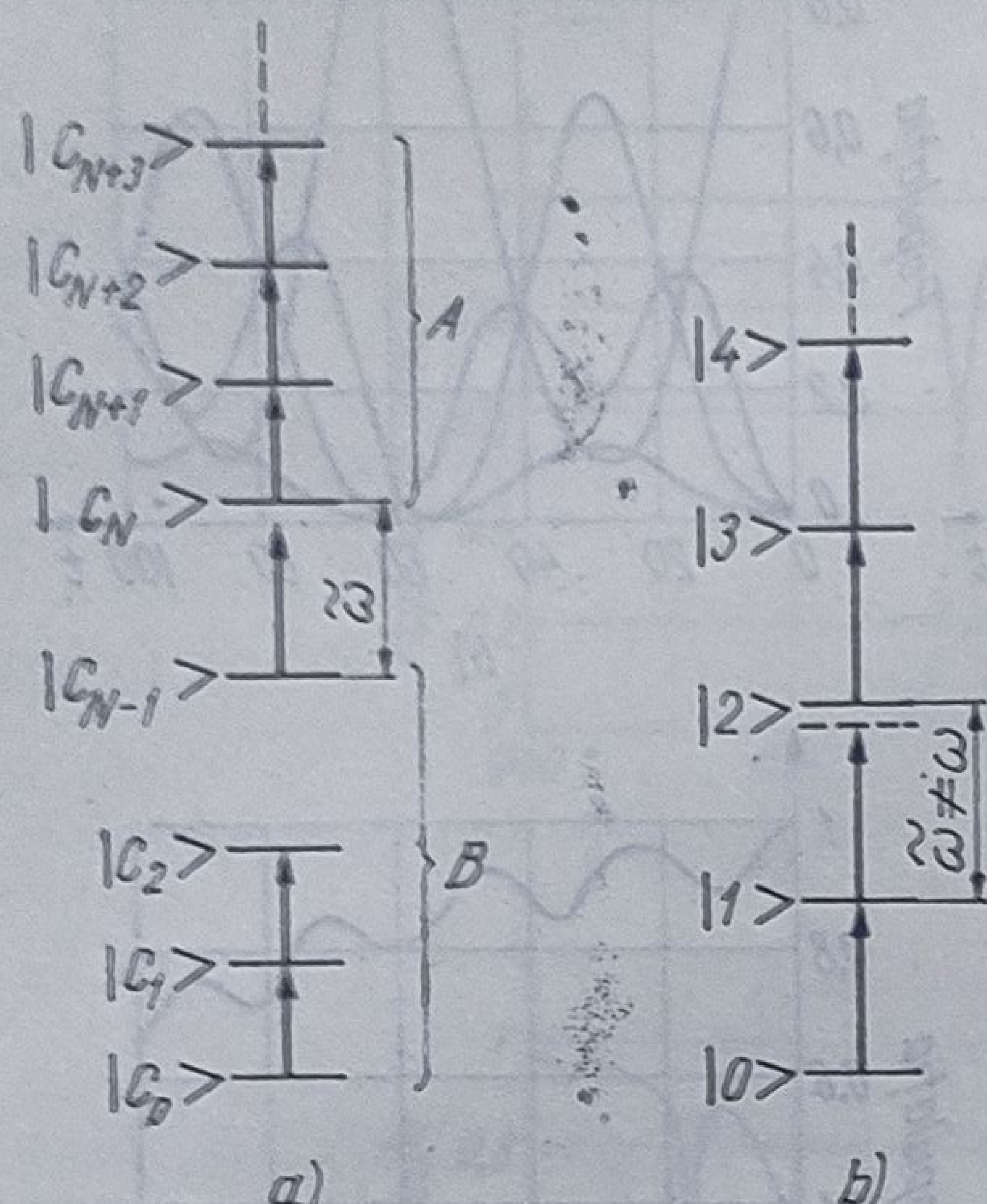


Fig. 11.8

Momentele de dipol care caracterizează tranziţiile între nivelele inferioare sînt mult mai mari decît cele corespunzătoare nivelelor superioare. Aceasta determină o variaţie mai rapidă a amplitudinii de probabilitate corespunzătoare nivelelor inferioare şi posibilitatea de a trata amplitudinea de probabilitate a celor superioare ca o perturbaţie.

Considerînd că subsistemul B (fig. 11.9) este format din N nivele, pentru amplitudinile de probabilitate $c_n(t)$ se pot scrie următoarele ecuaţii ($\tilde{\omega}$ fiind frecvenţa tranziţiei $A \rightarrow B$)

$$\frac{\mathrm{d}c_0}{\mathrm{d}t} = \mathrm{i}\gamma_1^R c_1 \tag{11.98}$$

$$\frac{\mathrm{d}c_n}{\mathrm{d}t} + \mathrm{i}(\omega_n - n\omega)c_n = \mathrm{i}\gamma_n^R c_n + \mathrm{i}\gamma_{n+1}^R c_{n+1} \quad \text{pentru } i \leqslant n \leqslant N-2 \tag{11.99}$$

$$\frac{\mathrm{d}c_{N-1}}{\mathrm{d}t} + \mathrm{i}[\omega_{N-1} - (N-1)\omega]c_{N-1} = \mathrm{i}\gamma_{N-1}^R c_{N-2} + \mathrm{i}\gamma_N^R c_N \tag{11.100}$$

$$\frac{\mathrm{d}c_N}{\mathrm{d}t} + \mathrm{i}(\omega_{N-1} + \tilde{\omega} - N\omega)c_N = \mathrm{i}\gamma_N^R c_{N-1} + \mathrm{i}\gamma_{N+1}^R c_{N+1} \tag{11.101}$$

$$\frac{\mathrm{d}c_n}{\mathrm{d}t} + \mathrm{i}(\omega_{N-1} + \tilde{\omega} - n\omega)c_n = \mathrm{i}\gamma_n^R c_{n-1} + \mathrm{i}\gamma_{n+1}^R c_{n+1} \quad \text{pentru } n \geqslant N+1. \tag{11.102}$$

Soluţia generală a unui astfel de sistem este

$$c_n^{(j)}(t) = P_n^{(j)} \exp(-\mathrm{i}\lambda_j t); \text{ cu } n \leqslant N-1 \text{ şi } 1 \leqslant j \leqslant N \tag{11.103}$$

şi corespunde celor N valori proprii λ ale ,,cvasienergiei''.

În aproximaţia de ordin zero, soluţia corespunzătoare nivelelor superioare constă dintr-o superpoziţie liniară de termeni $c_{N-1}^{(j)}(t)$ daţi de relaţia (11.103).

Procedînd astfel se poate considera că toată informaţia legată de evoluţia în timp a amplitudinilor de probabilitate poate fi obţinută prin rezol-

varea următoarelor ecuaţii

$$\frac{dc_N}{dt} + i(\omega_{N-1} + \tilde{\omega} - N\omega)c_N = i\gamma_N P_{N-1} \exp(-i\lambda t) + i\gamma^R_{N+1} c_{N+1} \tag{11.104}$$

$$\frac{dc_n}{dt} + i(\omega_{N-1} + \tilde{\omega} - N\omega)c_n = i\gamma^R_n c_{n-1} + i\gamma^R_{n+1} c_{n+1} \text{ pentru } n \geqslant N + 1. \tag{11.105}$$

Cu ajutorul substituţiei

$$c_n(t) = a_{n-N}(t) \exp[i(N\omega - \omega_{N-1} - \tilde{\omega})t] \tag{11.106}$$

sistemul de ecuaţii (11.105) poate fi adus la o formă mai simplă

$$\frac{da_0}{dt} = i\tilde{\gamma}^R_1 a_1 + ir \exp(iGt) \tag{11.107}$$

$$\frac{da_n}{dt} = i\tilde{\gamma}^R_n a_{n-1} + i\tilde{\gamma}^R_{n+1} a_{n+1} \text{ pentru } n \geqslant 1 \tag{11.108}$$

unde

$$r = P_{N-1}\gamma^R_N ; \; \tilde{\gamma}^R_n = \gamma^R_{n+N} \tag{11.109}$$

iar

$$G = \omega_{N-1} + \tilde{\omega} - N\omega - \lambda \tag{11.110}$$

reprezintă dezacordul frecvenţelor corespunzător tranziţiei între nivelele celor două subsisteme (fig. 11.9).

Ţinînd seama de condiţia iniţială $a_n(0) = 0$, soluţia sistemului de ecuaţii (11.107)–(11.108) $a_n(t)$ poate fi scrisă cu ajutorul soluţiei sistemului omogen $a_n(t)$ pentru care condiţia iniţială este $\tilde{a}_n(0) = \delta_{n0}$, sub forma

$$a_n(t) = r \exp(iGt) \int_0^t \tilde{a}_n(\tau) \exp(-iG\tau) \, d\tau \cdot \tag{11.111}$$

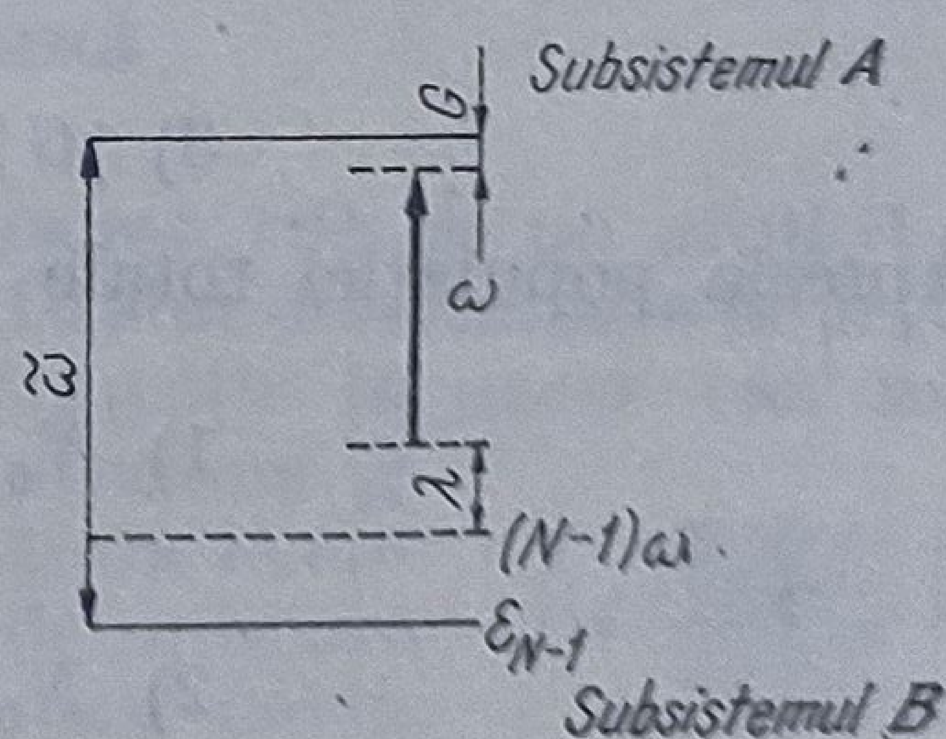


Fig. 11.9

Cu ajutorul acestei relaţii se poate obţine condiţia care trebuie îndeplinită de populaţia unui sistem de tip oscilator N_0, pentru a avea loc excitarea efectivă pe unul din nivelele superioare

$$N_0 = \sum_{n=0} |a_n(t)|^2 = 1. \tag{11.112}$$

Formalismul prezentat anterior poate fi aplicat în diferite cazuri particulare. Astfel, dacă nivelele superioare ale subsistemului A pot fi asimilate cu cele ale unui oscilator armonic pentru care frecvenţa Rabi

$\tilde{\gamma}_n^R = \tilde{\gamma}^R n^{1/2}$ soluția este [128]:

$$a_n = ir(i\tilde{\gamma}^R)^n (n!)^{-1/2} \exp(iGt) \cdot \int_0^t \tau^n \exp\{-[iG\tau - (\gamma^n)^{-2}\tau^2/2]\} d\tau. \tag{11.113}$$

Primul termen al expresiei populației

$$N_0 = (2\pi)^{1/2} |r|^2 (\tilde{\gamma}^R)^{-1} \exp(-G^2/2(\tilde{\gamma}^R)^2) + \\ + 2|r|^2 (\tilde{\gamma}^R)^{-2} . \Phi\left(1,\ 1/2;\ -\frac{G^2}{2(\tilde{\gamma}^R)^2}\right), \tag{11.114}$$

obținută cu ajutorul soluției (11.113) pentru $\gamma^R t \gg 1$, unde Φ este funcția hipergeometrică degenerată, descrie creșterea populației nivelelor superioare. Acest termen are valori foarte mici în cazul unor dezacorduri mari ale frecvenței G. Al doilea termen, are o valoare constantă și devine foarte mic cînd $|G| \gg \tilde{\gamma}^R$. Deci, excitarea sistemului devine efectivă numai atunci cînd dezacordul G al frecvențelor corespunzător tranziției între nivelul superior al subsistemului B (inferior) și cel inferior al subsistemului A (superior) este mai mică decît frecvența Rabi a subsistemului A (superior), adică $|G| \leqslant \tilde{\gamma}^R$.

În cazul în care momentele de dipol corespunzătoare tranzițiilor între nivelele superioare sînt constante ($\tilde{\gamma}_n = \tilde{\gamma} = ct$), funcție de condițiile pe care le îndeplinește dezacordul frecvențelor G

$$1)\ |G| < 2\tilde{\gamma}^R;\ \frac{2\tilde{\gamma}^R - |G|}{|G|} \gg 1 \tag{11.115}$$

$$2)\ |G| > 2\tilde{\gamma}^R;\ \frac{|G| - 2\tilde{\gamma}^R}{2\gamma^R} \gg 1 \tag{11.116}$$

$$3)\ |G| = 2\tilde{\gamma}^R \tag{11.117}$$

expresia populației totale a nivelelor pentru $\gamma t \gg 1$ devine

$$1)\ N_0 = 2\left(1 - \frac{G^2}{4(\tilde{\gamma}^R)^2}\right)^{1/2} \frac{|r|^2 t}{\tilde{\gamma}^R} \tag{11.118}$$

$$2)\ N_0 = \frac{4|r|^2}{[G^2 - 4(\tilde{\gamma}^R)^2]^{1/2} \{[|G| + (G^2 - 4(\tilde{\gamma}^R)^2]^{1/2}\}}. \tag{11.119}$$

$$3)\ N_0 = \frac{2|r|^2}{(\tilde{\gamma}^R)^2} \left(\frac{2}{\pi} \tilde{\gamma}^R t\right)^{1/2}. \tag{11.120}$$

Excitarea efectivă are loc atunci cînd $|G| = 2\tilde{\gamma}^R$ și corespunde situației cînd nivelele celor două subsisteme se întrepătrund.

În cazul general, cînd populația nivelelor depinde de timp, trecerea sistemului de pe nivelele energetice inferioare pe cele superioare este analogă cu trecerea unei particule printr-o barieră de potențial prin efect tunel. La început, o mică parte a populației nivelului $(N-1)$ trece irever-

sibil pe nivelele superioare ale subsistemului A. Apoi, populaţia nivelului $(N-1)$ este restabilită în urma pompajului de pe nivelele inferioare ale subsistemului B şi execută tranziţie pe alte nivele ale subsistemului A. În timp, tot mai multe nivele ale subsistemului A sînt implicate în aceste tranziţii pînă cînd se ajunge la o stare staţionară. Întrucît tranziţiile care au loc între nivelele subsistemului B se produc mai rapid decît cele corespunzătoare subsistemului A, populaţia nivelului $(N-1)$ este

$$c_{N-1}^{*}\, c_{N-1} \sim |P_{N-1}|^2. \quad (11.121)$$

Prin urmare, în ecuaţia de mişcare a populaţiei nivelelor superioare trebuie introdus un factor de corecţie $(1-N_0)$, astfel încît ea devine

$$\frac{\mathrm{d}N_0}{\mathrm{d}t} = (1 - N_0). \quad (11.122)$$

Soluţia acestei ecuaţii

$$N_0 = 1 - \exp(-\varkappa t) \quad (11.123)$$

unde

$$\varkappa = 2|P_{N-1}|^2\, \gamma_N^{R^2}/\tilde{\gamma}^R; \text{ pentru } G = 0 \text{ şi } \tilde{\gamma}_n^R = \tilde{\gamma}^R = \text{ct.} \quad (11.124)$$

$$\varkappa = (2\pi)^{1/2}|P_{N-1}|^2\, \gamma^{R^2}/\tilde{\gamma}^R; \text{ pentru } G = 0 \text{ şi } \tilde{\gamma}_n^R = \tilde{\gamma}^R n^{1/2} \quad (11.125)$$

pune în evidenţă faptul că tranziţia sistemului de pe nivelele inferioare pe cele superioare poate să aibă loc într-un timp suficient de lung chiar dacă populaţia nivelului $(N-1)$ este foarte mică.

11.6. Excitarea unui sistem cu mai multe nivele energetice care au o structură evasicontinuă

Tranziţiile care au loc de pe un nivel discret $|0\rangle$ pe un altul $|1\,q\rangle$ care are o structură cvasicontinuă ca în fig. 11.10 sînt determinate de legea conservării energiei. Formula probabilităţii de tranziţie în acest caz mai poartă numele de „legea de aur'' a lui Fermi. Notînd cu γ_q^R frecvenţele Rabi pentru tranziţiile $|0\rangle \to |1q\rangle$ cărora le corespund frecvenţele de tranziţie ω_q, ecuaţiile de mişcare pentru amplitudinile de probabilitate, în acest caz, devin

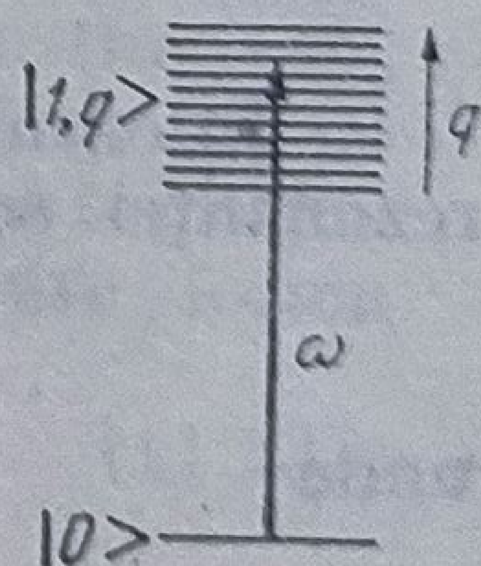


Fig. 11.10

$$\frac{\mathrm{d}C_0}{\mathrm{d}t} = \mathrm{i} \sum_q \gamma_q^R C_{1q} \quad (11.126)$$

$$\frac{\mathrm{d}C_{1q}}{\mathrm{d}t} + \mathrm{i}(\omega_q - \omega)C_{1q} = \mathrm{i}\gamma_q^R C_0. \quad (11.127)$$

Pentru a obţine o soluţie analitică a sistemului de ecuaţii (11.126)—(11.127) se consideră că nivelele $|1, q\rangle$ sînt echidistante, iar dependenţa lui $(\gamma_q^R)^2$ de q este de tip lorentzian

$$(\gamma_q^R)^2 = \frac{\sigma\delta}{\pi} \cdot \frac{(\gamma^R)^2}{q^2(\gamma^R)^2 + \sigma^2}\, \mathrm{tgh}\left(\frac{\pi\sigma}{\delta}\right). \quad (11.128)$$

În relația (11.128)

$$\omega_q = \omega_0 + q\delta \tag{11.129}$$

(cu $-\infty < q < +\infty$), δ este distanța dintre două nivele adiacente ale benzii, iar σ reprezintă semilărgimea curbei $(\gamma_q^R)^2$ funcție de $(q\delta)$. Soluția ecuațiilor (11.126)—(11.127)poate fi obținută fie cu ajutorul unei transformate Laplace, fie cu ajutorul aproximației „cvasienergetice'' prezentate la paragraful 10.1. Pe baza modelului transformatei Laplace prezentat în lucrarea [128] și ținînd seama de condițiile inițiale

$$C_0(0) = 1,\ C_{1q}(0) = 0$$

soluția sistemului de ecuații (11.126)—(11.127) are forma

$$C_0(t) \simeq \frac{r_1 + \sigma - i\Delta}{r_1 - r_2} e^{r_1 t} + \frac{r_2 + \sigma - i\Delta}{r_2 - r_1} e^{r_2 t} \tag{11.130}$$

unde

$$r_{1,2} = -(\sigma - i\Delta)/2 \pm [(\sigma - i\Delta)^2/4 - (\gamma^R)^2]^{1/2}. \tag{11.131}$$

Expresia generală a amplitudinii de probabilitate $C_0(t)$ poate fi particularizată în două cazuri care prezintă interes practic

— cîmp intens, care implică condiția

$$\gamma^R \gg |\sigma - i\Delta| \tag{11.132}$$

și corespunde unei amplitudini care execută oscilații amortizate

$$C_0(t) \sim \exp\left(-\frac{\sigma - i\Delta}{2} t\right) \cos \gamma^R t; \tag{11.133}$$

— cîmp slab, pentru care

$$\gamma^R \ll |\sigma - i\Delta| \tag{11.134}$$

iar amplitudinea de probabilitate scade exponențial fără a executa oscilații

$$C_0(t) \sim \exp\left(-i\frac{(\gamma^R)^2 \Delta}{\sigma^2 + \Delta^2} t\right) \exp\left(-\frac{(\gamma^R)^2 \sigma}{\sigma^2 + \Delta^2} t\right). \tag{11.135}$$

În cazul unui cîmp slab, pentru o frecvență Rabi γ_r^R corespunzătoare rezonanței se obține următoarea expresie a populației

$$|C_0(t)|^2 \sim \exp(-wt) \tag{11.136}$$

unde

$$w = 2\pi\gamma_r^{R^2}/\delta \tag{11.137}$$

reprezintă rata de excitare.

Dacă frecvența Rabi la rezonanță este mai mică decît frecvența corespunzătoare tranziției dintre două nivele adiacente ale benzii $\gamma_r^R < \delta$ atunci nivelul mai coborît interacționează numai cu singurul nivel superior apropiat de rezonanță.

Cînd $\gamma_r^R \ll \delta$, au loc excitații ale populației la fel ca în cazul unui sistem cu două nivele. Dependența populației de timp, pentru diferite

condiţii de excitare este prezentată în fig. 11.11. Parametrii sînt următorii : $\Delta/\delta = 0$, $\sigma/\delta = 5$, $\gamma_0/\delta = 0{,}5$ în cazul curbei 11.11 (1) şi $\Delta/\delta = 0$; $\sigma/\delta = 5$ şi $\gamma_0/\delta = 0{,}2$ în cazul curbei 11.11 (2).

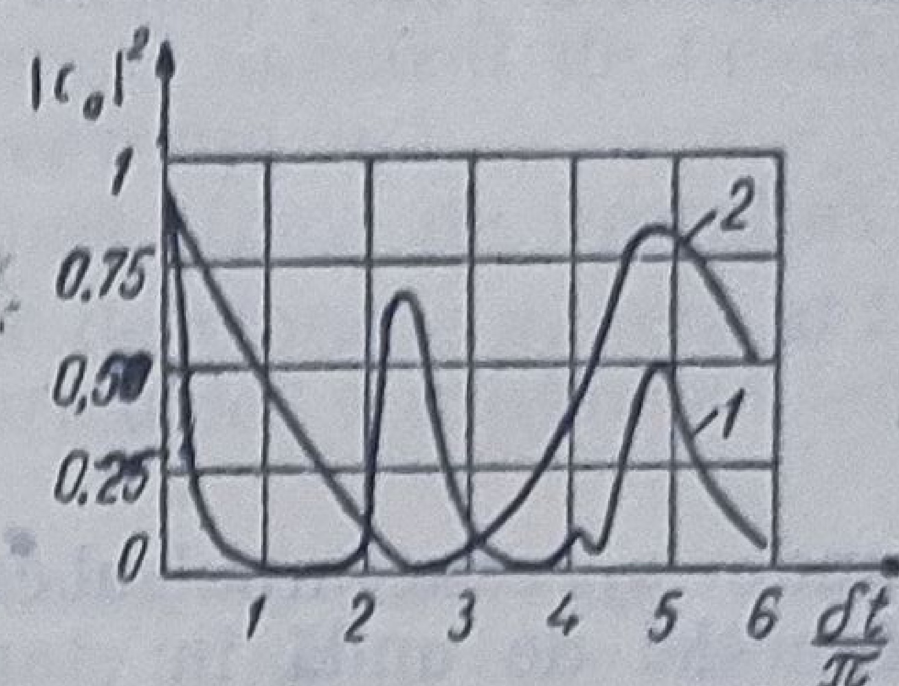


Fig. 11.11

11.7. Excitarea multifotonică a modurilor de vibraţie triplu degenerate ale moleculelor sferice

Studiul proceselor de excitare multifotonică a modurilor de vibraţie triplu degenerate ale moleculelor sferice, cum ar fi, de exemplu SF_6, $SiFe_4$, CCl_4, OsO_4, UF_6 este determinat de simetria înaltă a acestor molecule care permite verificarea modelelor matematice introduse pentru descrierea lor pe baza datelor spectroscopice obţinute privind stările de vibraţie—rotaţie.

Complexitatea benzilor modurilor triplu degenerate ale acestor molecule este rezultatul mai multor efecte, cum ar fi : despicarea nivelelor din cauza anarmonicităţii vibraţiilor, despicarea (Teller—Coriolis) datorită interacţiilor dintre diferitele momente cinetice de rotaţie—vibraţie, despicarea fiecărui nivel de rotaţie în mai multe stări permise de grupul punctual de simetrie al moleculei şi despicarea hiperfină. Deşi au fost rezolvate structurile determinate de despicarea hiperfină cu ajutorul spectroscopiei de saturaţie, în calcule nu este posibil să se ţină seamă de toate interacţiile, considerîndu-se numai cele mai importante : de vibraţie, de rotaţie, precum şi cele determinate de interacţia dintre momentele cinetice (Teller—Coriolis).

Pentru rezolvarea ecuaţiei lui Schrödinger aplicată acestor molecule, în vederea determinării spectrului energetic, trebuie cunoscută forma hamiltonianului sistemului. Hamiltonianul pentru un mod de vibraţie triplu degenerat poate fi exprimat cu ajutorul unei sume de hamiltonieni corespunzători oscilatorilor armonici tridimensionali. Termenii de ordinul trei sau mai mare care apar în expresia energiei potenţiale corespund vibraţiilor anarmonice. Notînd cu q_j $(j = 1, 2, 3)$ operatorii corespunzători coordonatelor normale ale unui mod triplu degenerat ν_j, se poate demonstra [145] pe baza transformărilor acestor coordonate cu elementele grupului de simetrie octaedric (din care face parte şi molecula de SF_6) că termenul energiei potenţiale corespunzătoare vibraţiei anarmonice $V_a^{(i)}$ are forma

$$V_a^{(i)} = C_0^{(i)} V_0^{(i)} + C_1^{(i)} V_1^{(i)} + C_2^{(i)} V_2^{(i)} + C_3^{(i)} O_2^{(i)} \tag{11.137}$$

unde :

$$V_0^{(i)} = (q_1^2 + q_2^2 + q_3^2)^2 = V_1^{(i)} + 2V_2^{(i)} \tag{11.138}$$

$$V_1^{(i)} = q_1^4 + q_2^4 + q_3^4 \tag{11.139}$$

$$V_2^{(i)} = q_1^2 q_2^2 + q_1^2 q_3^2 + q_2^2 q_3^2 \tag{11.140}$$

iar $O_2^{(i)}$ este un operator care determină despicarea nivelelor.

Operatorii coordonatelor normale q_j pot fi exprimați cu ajutorul operatorilor de creare $a_j^{\dagger}$ și anihilare a_j pe baza relațiilor de transformare următoare [128] (anexa 2)

$$a_j^{\dagger} = \frac{1}{\sqrt{2}}(q_j - \mathrm{i}p_j) \tag{11.141}$$

$$a_j = \frac{1}{\sqrt{2}}(q_j + \mathrm{i}p_j) \tag{11.142}$$

unde p_j este impulsul canonic conjugat lui q_j. Ținînd seama de expresia funcției de undă în starea fundamentală

$$|0,\ 0,\ 0\rangle = (2\pi)^{-3/2} \exp\left[-\frac{1}{2}(q_1^2 + q_2^2 + q_3^2)\right], \tag{11.143}$$

funcția de undă care descrie diferite moduri de vibrație poate fi exprimată cu ajutorul operatorului de creare $a_j^{\dagger}$ astfel

$$|n_1,\ n_2,\ n_3\rangle = \sum_{j=1}^{3} \frac{(a_j^{\dagger})^{n_j}}{\sqrt{n_j\,!}} |0,\ 0,\ 0\rangle. \tag{11.144}$$

Funcția de undă $|n_1,\ n_2,\ n_3\rangle$ reprezintă o stare în care pentru obținerea modului triplu degenerat cu frecvența ν_j sînt necesare n_1 cuante în primul mod, n_2 în al doilea și n_3 în al treilea, numărul total de cuante n corespunzător modului ν_j fiind

$$n = n_1 + n_2 + n_3. \tag{11.145}$$

Pe baza modelelor teoretice prezentate în [146] puterea de ordinul n a operatorului coordonată poate fi exprimată cu ajutorul operatorilor de creare și anihilare sub forma

$$(q_j)^n = \sum_{k,\ l,\ m} \frac{n\,!}{2^{m+n/2}\, k\,!\, l\,!\, m\,!} (a_j^{\dagger})^k (a_j)^l \tag{11.146}$$

unde k, l, m sînt numere întregi pozitive care satisfac relația

$$k + l + 2m = n. \tag{11.147}$$

Cu ajutorul relației (11.146) expresiile operatorilor energiei potențiale care determină armonicitatea vibrațiilor devine

$$V_1^{(i)} = \frac{1}{4} \sum_{j=1}^{3} [(a_j^{\dagger})^4 + a_j^4 + (4n_j + 6)a_j^2 + (a_j^{\dagger})^2(4n_j + 6) + + (6n_j^2 + 6n_j + 3)] \tag{11.148}$$

$$V_2^{(i)} = O_1^{(i)} + O_2^{(i)} + (n_1 n_2 + n_1 n_3 + n_2 n_3) + (n_1 + n_2 + n_3) \tag{11.149}$$

$$O_1^{(i)} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{3} [(a_j^{\dagger})^2 + a_j^2] + \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{3} \sum_{k \neq j} n_j [(a_k^{\dagger})^2 + a_k^2] + + \frac{1}{4} \sum_{j=1}^{3} \sum_{k>j} [(a_j^{\dagger})^2 (a_k^{\dagger})^2 + a_j^2 a_k^2] \tag{11.150}$$

$$O_2^{(i)} = \frac{1}{4} \sum_{j=1}^{3} \sum_{k>j} [(a_j^{\dagger})^2 a_k^2 + a_j^2 (a_k^{\dagger})^2] \tag{11.151}$$

unde

$$n_j = a_j^{\dagger} a_j \tag{11.152}$$

este operatorul numărului de particule și reprezintă numărul de cuante corespunzătoare componentei de ordinul j (cu frecvența ν_j.)

În expresiile operatorilor $V_1^{(i)}$ și $V_2^{(i)}$ apar două tipuri de operatori:

— cei care schimbă numărul total de cuante de vibrație n, cum ar fi de exemplu $(a_j^{\dagger})^4$, aceștia determinînd mixarea anarmonică a stărilor $n\nu_j$ cu stările $(n \pm 2)\nu_j$ și $(n \pm 4)\nu_j$;

— cei care nu schimbă numărul total de cuante n, dar care determină transmiterea excitației de la un component ν_j la altul, care sînt de forma: $(a_1^{\dagger})^2 a_2^2$. Exprimarea operatorilor $V_1^{(i)}$ și $V_2^{(i)}$ funcție de operatorii de creare și anihilare permite calculul prin mijloace mai simple a diferiților termeni ai energiei potențiale corespunzătoare diferitelor valori ale numerelor cuantice de vibrație întrucît elementele de matrice ale operatorilor de creare și anihilare au forma

$$\langle n_1', n_2', n_3' \,|\, (a_j^{\dagger} \,|\, n_1, n_2, n_3 \rangle\rangle = \sqrt{n_j'}\, \delta_{n_j', n_j+1} \prod_{k \neq j} \delta_{n_k', n_k} \tag{11.153, a}$$

$$\langle n_1', n_2', n_3' \,|\, (a_j \,|\, n_1, n_2, n_3 \rangle\rangle = \sqrt{n_j}\, \delta_{n_j', n_j-1} \prod_{k \neq j} \delta_{n_k', n_k} \tag{11.153, b}$$

unde δ_{n_k', n_k} este simbolul lui Kronecker.

Cu ajutorul operatorilor de creare și anihilare, hamiltonianul H_j corespunzător modului de vibrație cu frecvența ν_j poate fi exprimat sub forma

$$H_j = \nu_j \sum_{j=1}^{3} n_j + \frac{3}{2} C_1^{(i)} \sum_{j=1}^{3} n_j(n_j - 1) + C_2^{(i)} \sum_{j=1}^{3} \sum_{k>j} n_j n_k + C_3^{(i)} O_2^{(i)}. \tag{11.154}$$

Pentru deducerea expresiei hamiltonianului (11.154) s-a considerat că termenii care conțin operatorii de creare și anihilare la puteri mai mari decît șase, precum și cei care schimbă numărul total de cuante sînt nesemnificativi și nu au fost luați în calcule. În expresia aceluiași hamiltonian, cu excepția operatorului $O_2^{(i)}$, toți ceilalți operatori sînt diagonali.

Dacă se consideră că în comparație cu alți termeni coeficientul operatorului $O_2^{(i)}$ este mic, valorile proprii ale energiei calculate cu hamiltonianul dat de relația (11.154) sînt

$$E_j(n_1, n_2, n_3) = \nu_j \sum_{j=1}^{3} n_j + \frac{3}{2} C_1^{(i)} \sum_{j=1}^{3} n_j(n_j - 1) + C_2^{(i)} \sum_{j=1} \sum_{k>j} n_j n_k. \tag{11.155}$$

Gradul de degenerare al nivelelor energetice $E_j(n_1, n_2, n_3)$ este unu, trei sau șase după cum numerele n_j sînt odată, de două sau de trei ori egale între ele. Numărul total de stări pentru un n dat este $\frac{(n+1)(n+2)}{2}$.

În cazul general, cînd contribuţia termenului $C_3^{(i)}O_2^{(i)}$ devine semnificativă, se poate demonstra că funcţiile proprii ale hamiltonianului (11.154) sînt de forma [128]

$$|nlm\rangle = A_{nl}(\underline{a}^+)^{2n}\ \tilde{y}_{lm}(a^+)\,|0,\ 0,\ 0\rangle \qquad (1.156)$$

unde

$$A_{nl} = (-1)^n\,(4\pi)^{1/2}\,[(2n+2l+1)!!\,(2n)!!]^{-1/2} \qquad (11.157)$$

este un factor de normare, iar

$$(\underline{a}^+)^2 = \sum_{j=1}^{3}(a_j^+)^2. \qquad (11.158)$$

Funcţia $\tilde{y}_{lm}(\mathbf{r})$ este dată de produsul dintre vectorul de poziţie $\mathbf{r}$ la puterea k şi funcţia armonică sferică $Y_{lm}(\theta,\ \Phi)$

$$\tilde{y}_{lm}(r) = r^k Y_{lm}(\theta,\ \Phi). \qquad (11.159)$$

Cu ajutorul funcţiilor proprii $|nlm\rangle$ (11.156) se pot calcula valorile proprii ale energiei modului de vibraţie j sub forma

$$E_j(nlm) = \left(n+\frac{3}{2}\right)\omega_j + \chi_{jj}\left(n+\frac{3}{2}\right)^2 + G_{jj}l(l+1) =$$

$$= n\nu_j + \chi_{jj}n(n-1) + G_{jj}[l(l+1)-2n] \qquad (11.160)$$

unde între parametrii χ_{jj}, G_{jj}, T_{jj} şi $C_1^{(i)}$, $C_2^{(i)}$, $C_3^{(i)}$ există relaţiile

$$\chi_{jj} = \frac{9}{10}C_1^{(i)} + \frac{1}{5}C_2^{(i)} + \frac{1}{10}C_3^{(i)} \qquad (11.161)$$

$$G_{jj} = -\frac{3}{10}C_1^{(i)} + \frac{1}{10}C_2^{(i)} - \frac{1}{5}C_3^{(i)} \qquad (11.162)$$

$$T_{jj} = \frac{3}{20}C_1^{(i)} - \frac{1}{20}C_2^{(i)} - \frac{1}{40}C_3^{(i)}. \qquad (11.163)$$

Pentru deducerea relaţiei (11.160) s-au neglijat termenii care conţin coeficienţii T_{jj}, ca fiind foarte mici. Întrucît numărul cuantic l poate să ia valorile

$$l = n,\ n-2,\ \ldots,\ 1 \text{ sau } 0 \qquad (11.164)$$

pentru orice valoare a lui n se obţin $\frac{n}{2}$ valori proprii $E_j\ (nlm)$ diferite una pentru fiecare valoare a lui l. Fiecare valoare proprie este degenerată de $(2l+1)$ ori pentru că numărul cuantic m ia $(2l+1)$ valori

$$m = -l,\ \ldots,\ 0,\ \ldots\ l. \qquad (11.165)$$

Numărul total de nivele pentru o valoare dată a lui n este $(n+1)(n+2)$.

Semnificaţia fizică a coeficienţilor care apar în expresia energiei este următoarea: coeficienţii χ_{jj} şi G_{jj} determină deplasarea frecvenţei dato-

rită anarmonicității vibrațiilor, iar coeficientul T_{jj} determină despicarea nivelelor. Calculul acestor coeficienți se poate face pe baza modelului cîmpului central de forțe prezentat în lucrarea [128].

Pentru a calcula energia nivelelor modului de vibrație $n\nu_j$ trebuie rezolvată o ecuație seculară al cărei ordin este egal cu numărul maxim de nivele cu aceeași simetrie care apar în modul $n\nu_j$. Pentru $n = 2$ ecuația este liniară; pentru $n = 3$ și 4 ea devine pătratică și soluția ei este dată în lucrarea [128].

Ecuația seculară mai poate fi rezolvată analitic și pentru valori ale lui $n = 5$ și 6 însă pentru $n \geq 7$ rezolvarea implică utilizarea calculatorului.

În figura 11.12 este prezentată diagrama nivelelor energetice calculate pentru molecula de SF_6. Săgețile indică poziția acelor nivele pentru care despicarea cauzată de anarmonicitatea vibrațiilor este zero, iar acestea suferă o deplasare. Numerele întregi din paranteze reprezintă valorile numerelor n_1, n_2 și n_3 corespunzătoare unui anumit nivel (11.145). Fiecare nivel este degenerat, gradul de degenerare fiind egal cu numărul de permutări distincte ale numerelor n_1, n_2, n_3.

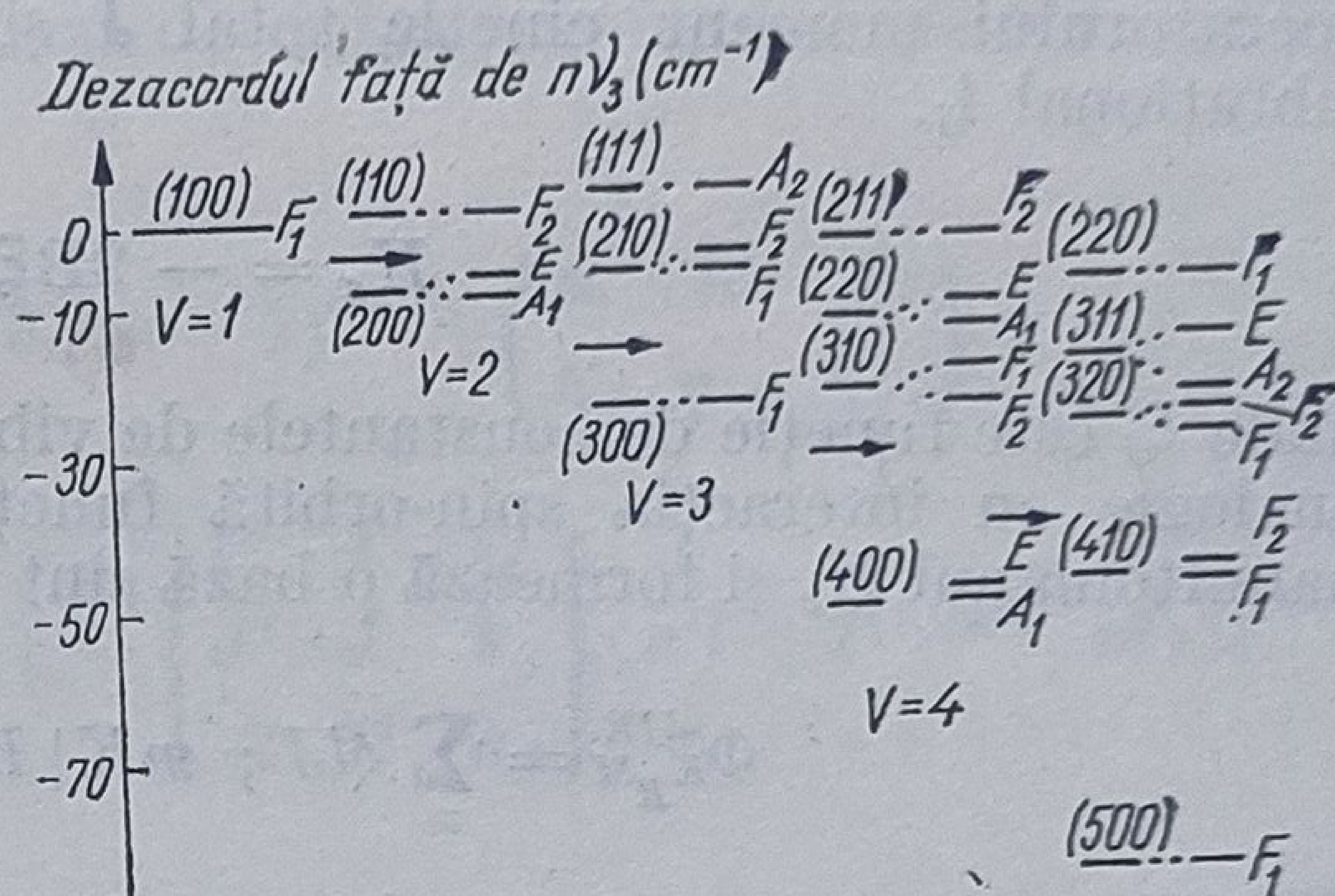


Fig. 11.12

În modelul prezentat anterior nu a fost luată în considerare mișcarea de rotație a moleculelor. Pe baza aproximației Born—Oppenheimer funcțiile care descriu stările de vibrație—rotație ale unei molecule de formă sferică pot fi calculate ca un produs al funcțiilor de undă de vibrație respectiv cele ale rotatorului rigid. Din cauza interacției dintre mișcarea de rotație și cea de vibrație (numită și Coriolis) alegerea unui set de funcții de vibrație—rotație care să formeze o bază este mai complicată. Dacă mărimea despicării nivelelor de vibrație datorită anarmonicității vibrațiilor este mai mare decît energia de interacție vibrație—rotație (Coriolis) funcțiile de undă de vibrație—rotație pot fi alese ca un produs al funcțiilor de undă de vibrație pură și respectiv rotație. În caz contrar, este mai convenabil să se aleagă ca bază funcțiile proprii corespunzătoare momentelor cinetice cuplate.

Funcțiile de undă care descriu mișcarea de rotație a moleculelor poliatomice considerate ca rotatori rigizi ψ^J_M pot fi exprimate cu ajutorul unei combinații liniare a elementelor de matrice de rotație $D^J_{KM}(\omega)$, care în cazul unor molecule de formă sferică se reduce la un singur termen de forma [128]

$$\psi^J_{KM}(\omega) = \left(\frac{2J+1}{8\pi^2}\right)^{1/2} D^J_{KM}(\omega^{-1}). \qquad (11.166)$$

Proiecția M a momentului cinetic total $\mathbf{J}$ de-a lungul axei Oz dă naștere și în cazul moleculelor sferice unui număr cuantic bun. În cazul în care diferența energetică dintre două nivele de vibrație este mult mai mare decît energia corespunzătoare interacției dintre mișcarea de vibra-

ţie şi cea de rotaţie (Coriolis) funcţia de undă de vibraţie-rotaţie Ψ^{nsJ}_{KM} care diagonalizează hamiltonianul vibraţiilor anarmonice poate fi scrisă ca un produs

$$\Phi^{nsJ}_{KM} = \Psi_{ns}(\{q\})\, D^{J}_{KM}(\omega^{-1}). \tag{11.167}$$

În relaţia (11.167) n este numărul de cuante de vibraţie, iar s reprezintă alte numere cuantice necesare pentru specificarea diferitelor stări de vibraţie, $s = \{lm\}$.

Hamiltonianul care descrie interacţia dintre mişcarea de vibraţie şi cea de rotaţie (Coriolis) poate fi exprimat prin produsul scalar al operatorului moment cinetic total $\mathbf{J}$ şi operatorul momentului cinetic vibraţional $\mathbf{l}_j$:

$$H_c = -2B\xi_j \mathbf{J}\cdot\mathbf{l}_j \tag{11.168}$$

unde ξ_j este funcţie de constantele de vibraţie şi geometria moleculei. Prin analogie cu interacţia spin-orbită funcţiile de undă care diagonalizează hamiltonianul H_c şi formează o bază sînt cele de vibraţie-rotaţie

$$\Phi^{nlJR}_{K_R M} = \sum_m \langle lJ\,;\, mK \,|\, RK_R\rangle [\Phi^{nl}_m]^* \,\psi^J_{KM} \tag{11.169}$$

pentru care operatorii $\mathbf{J}$ şi $\mathbf{l}_j$ sînt cuplaţi şi determină un nou moment cinetic

$$\mathbf{R} = \mathbf{J} - \mathbf{l}_i. \tag{11.170}$$

Numerele cuantice bune corespunzătoare acestei baze de armonice sferice cuplate sînt : n, l, J, R, M şi proiecţia K_R a lui $\mathbf{K}$ de-a lungul axei z a moleculei. Astfel, vectorii bazei corespunzători armonicelor sferice cuplate generează reprezentarea $D^{(R)}$ a grupului ortogonal $O_3^{(+)}$.

Cu ajutorul funcţiilor de vibraţie—rotaţie date de relaţia (11.169) se poate descrie mişcarea de rotaţie—vibraţie a moleculelor şi de asemenea se pot calcula elementele de matrice ale operatorilor de vibraţie—rotaţie. Tensorul operatorului de vibraţie-rotaţie $T^{(k_1k_2k)}_q$ se poate construi cu ajutorul tensorului operatorului de vibraţie pură de rang k_1 şi cu cel corespunzător rotaţiei pure care are rangul k_2 pe baza regulilor generale [128]

$$T^{(k_1k_2k)}_q = \sum_{q'} T^{(k_1)(vib)}_{q'}\, T^{(k_2)(rot)}_{q-q'} \langle k_1k_2\,;\, q-q' | kq\rangle. \tag{11.171}$$

De exemplu, operatorul Coriolis (11.168) poate fi exprimat cu ajutorul tensorilor de vibraţie şi rotaţie pură sub forma [128]

$$H_c = 2\sqrt{3}\, B\zeta T^{(110)}_0 \tag{11.172}$$

$$T^{(1)(rot)}_0 = -J_z \tag{11.173}$$

unde

$$T_{\pm 1}^{(1)(rot)} = \pm \frac{1}{\sqrt{2}} (J_x \pm iJ_y) \tag{11.174}$$

$$T_0^{(1)(vib)} = l_z \tag{11.175}$$

$$T_{\pm 1}^{(1)(vib)} = \mp \frac{1}{\sqrt{2}} (l_x \pm il_y). \tag{11.176}$$

Elementele de matrice ale operatorului tensorial de vibrație-rotație (11.171) exprimate într-o bază de funcții armonice sferice cuplate sînt [128]

$$\left(\Phi_{K'_{R'}M'}^{n'l'JR'}, T_q^{(k_1 k_2 k)}\right) \Phi_{K_R M}^{nlJR} = \delta_{M'M}(-1)^{R+K_{R'}} \begin{pmatrix} R & K & R' \\ K_R & q & -K'_{R'} \end{pmatrix} \times$$

$$\times [(2k+1)(2R'+1)(2R+1)]^{1/2} \cdot \begin{Bmatrix} l' & l & k_1 \\ J' & J & k_2 \\ R' & R & k \end{Bmatrix} \langle n'l' \| T^{(k_1)(vib)} \| nl \rangle \times$$

$$\times \langle J \| T^{(k_2)(rot)} \| J \rangle. \tag{11.177}$$

Hamiltonianul de vibrație—rotație pentru un mod triplu degenerat poate fi exprimat cu ajutorul operatorilor tensoriali de rotație și respectiv vibrație pură prin relația [128]

$$H_j = \omega_j T_{000}^{10} + \chi_{jj} T_{000}^{20} + G_{jj} l_j^2 + B_0 T_{000}^{01} + 2\sqrt{3}\, B_0 \xi_j T_{110} - \alpha T_{000}^{11}. \tag{11.178}$$

Folosind ca bază funcțiile de vibrație-rotație $\Phi_{k_R M}^{nlJR}$ se pot calcula valorile proprii ale energiei modului de vibrație j

$$E(nlJR) = n\nu_j + n(n-1)\chi_{jj} + [l(l+1) - 2n]\, G_{jj} + B_0 J(J+1) +$$

$$+ B_0 \xi_j [R(R+1) - J(J+1) - l(l+1) + 2n] - \alpha n J(J+1). \tag{11.179}$$

Pentru a determina regulile de selecție care guvernează tranzițiile care au loc între diferite nivele, trebuie calculate elementele de matrice ale tranzițiilor de dipol. Operatorul momentului de dipol al unei molecule poliatomice aflată în stare fundamentală poate fi exprimat în primă aproximație sub forma unei sume dintre momentul de dipol permanent și componentele sale temporale corespunzătoare diferitelor moduri de vibrație.

Din cauza rotațiilor moleculelor, momentul de dipol permanent poate determina tranziții între nivelele de rotație. Astfel, în timp ce moleculele cu simetrie tetraedrică pot avea un spectru de rotație puțin intens moleculele a căror simetrie este octaedrică nu prezintă un astfel de spectru. Tranzițiile care au loc între diferite nivele de vibrație—rotație sînt determinate de acea componentă a momentului de dipol care depinde de operatorii corespunzători coordonatelor normale $\{q\}$. În sistemul laboratorului componentele operatorului momentului de dipol sînt date de relația

$$d_\sigma = A \sum_\tau D^1_{\tau\sigma}(\omega^{-1})\, q_\tau \tag{11.180}$$

unde A este o constantă caracteristică moleculei, iar D^1 este matricea de rotație pentru $J = 1$. Elementele de matrice ale operatorului momentului de dipol d_σ pot fi evaluate folosind ca baza funcțiile de vibrație—rotație Φ^{nlJR}_{KM} sub forma

$$(\Phi^{n'l'J'R'}_{P'M'},\, d_\sigma \Phi^{nlJR}_{PM}) =$$

$$= A\delta_{R'R}\delta_{P'P}(-1)^{J+M'+1}\begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ M & \sigma & -M' \end{pmatrix} \cdot [3(2R+1)(2J'+1)\times$$

$$\times (2J+1)]^{1/2}\langle nl \,\|\, q \,\|\, n'l'\rangle \cdot \begin{Bmatrix} l' & l & 1 \\ J' & J & 1 \\ R' & R & 0 \end{Bmatrix}. \tag{11.181}$$

Elementele de matrice reduse sînt date de relațiile

$$\langle nl \,\|\, \hat{q} \,\|\, n'l'\rangle = \begin{cases} [(n+l+3)(l+1)/2]^{1/2} & \text{pentru } n' = n+1;\ l' = l+1 \\ [(n'-l+2)l/2]^{1/2} & \text{pentru } n' = n+1;\ l' = l-1. \end{cases} \tag{11.182}$$

Din analiza relațiilor de mai sus, se obțin următoarele reguli de selecție care guvernează tranzițiile de dipol, pentru moleculele de formă sferică

$$R' = R \tag{11.183}$$

$$P' = P \tag{11.184}$$

$$n' = n \pm 1 \tag{11.185}$$

$$l' = l \pm 1 \tag{11.186}$$

$$J' = J \text{ sau } J \pm 1 \tag{11.187}$$

$$M' = M + \sigma. \tag{11.188}$$

Aceste reguli se modifică dacă stările proprii ale moleculei sînt obţinute prin superpoziţia unor stări caracterizate de momente cinetice de rotaţie diferite **R** sau tipuri de simetrie diferite. În anumite condiţii, $T_{JJ} > G_{JJ}$, unele componente ale operatorului anarmonic, ca de exemplu, T_{404} pot mixa stări cu momente cinetice de rotaţie diferite. Mixarea stărilor cu momente cinetice de rotaţie diferite este importantă în cazul stărilor vibraţionale cu $n = 1$ iar mixarea stărilor cu diferite simetrii joacă un rol important în cazul stării fundamentale. În lucrările [152] şi [153] aceste consideraţii teoretice sînt aplicate la studiul spectrului moleculei de SF_6.

Spectrul modului de vibraţie $3\nu_3$ obţinut experimental pentru SF_6, chiar dacă este limitat de efectul Doppler permite determinarea parametrilor anarmonici corespunzători acestui nivel, care sînt [128]

$$\chi_{33} \simeq -1{,}56\ \text{cm}^{-1};\quad G_{33} \simeq 0{,}9\ \text{cm}^{-1};\quad T_{33} \simeq -0{,}25\ \text{cm}^{-1}.$$

Folosind ca bază funcţiile $|nlJR;\, K_R M\rangle$ şi neţinînd seama de spinul nuclear se poate calcula gradul de degenerare g_{nR} al nivelului n astfel

$$g_{nR} = \sum_{l=0 \text{ sau } 1}^{n} \sum_{J=R-l}^{R+l} \sum_{M=-J}^{J} \sum_{K=-R}^{R} = \sum_{l=0 \text{ sau } 1}^{n} \sum_{J=R-l}^{R+l} (2J+1)(2R+1) =$$

$$= d_n^{(v)} \cdot (2R+1)^2 \tag{11.189}$$

unde

$$d_n^{(v)} = \frac{1}{2}(n+1)(n+2) \tag{11.190}$$

reprezintă numărul total de stări care implică n cuante în cazul unui oscilator triplu degenerat. Dacă în setul numerelor cuantice se includ şi numerele cuantice de spin nuclear I şi M_I, atunci trebuie formate combinaţii liniare ale funcţiilor de undă de spin $|IM_I\rangle$ care se transformă pe baza reprezentărilor ireductibile ale grupului de simetrie căruia îi aparţine molecula [128]. Se constată conform principiului lui Pauli că numai un singur tip de simetrie care include spinul nuclear poate fi asociat cu fiecare tip de simetrie de vibraţie—rotaţie. Pe baza modelului prezentat în lucrarea [128] gradul de degenerare al unei stări de vibraţie—rotaţie care include şi spinul nuclear şi este determinată de numerele cuantice n, l, J, R, p şi M, se calculează cu ajutorul relaţiei

$$g_{nR} = d_n^{(v)}(2R+1)d_R^{(r)};\ (d_R^{(r)} = \sum_p d_{R_p}^{(r)}) \tag{11.191}$$

unde $d_{R_p}^{(r)}$ este degenerarea stărilor de vibraţie-rotaţie-spin.

Un rol important în procesele de excitare multifotonică îl poate juca distribuţia moleculelor după temperatură. În anumite condiţii distribuţia termică poate reduce importanţa proceselor coerente în cadrul fenome-

nelor de excitare multifotonică rezonantă. Dacă se consideră că stările excitate ale diferitelor moduri de vibrație sînt degenerate și că despicarea datorită anarmonicității vibrațiilor este comparabilă cu energia de rotație pe baza modelului prezentat în lucrarea [155] se poate demonstra că energia totală a unei stări efective corespunzătoare modului de vibrație ν_3 al moleculei de SF_6, este dată de relația

$$E_t(nlJR, \{v\}) = E(nlJR) + \sum_{k\neq 3} \chi_{3k}\left(n + \frac{3}{2}\right)\left(v_k + \frac{d_k}{2}\right) + \sum_{R\neq 3} v_k\left(\omega_k + \frac{d_k}{2}\right). \tag{11.192}$$

În relația (11.192) energia mișcării de vibrație—rotație $E(nlJR)$ este dată de (11.179), χ_{3k} reprezintă coeficientul de anarmonicitate între modurile ν_3 și ν_k, d_k determină degenerarea modului ν_k, iar numerele cuantice $\{v\} = \{v_1, v_2, v_3, v_4, v_5, v_6\}$ corespund numărului total de cuante al celorlalte moduri excitate. Dacă energia de interacție dintre modul de frecvență ν_3 și celelalte moduri este liniară în n, apar deplasări ale frecvențelor de tranziție mai ales în domeniul frecvențelor joase.

De asemenea, distribuția termică modifică și probabilitatea de a găsi sistemul într-o stare efectivă $|nlJR, \{v\}\rangle$ sub acțiunea unei radiații de pompaj, inițial el găsindu-se în starea $|n'\,l'\,J'\,R', \{v\}\rangle$. Folosind formalismul matricei densitate, se poate demonstra că media în timp a probabilității totale este [128]

$$\langle w_{tot}(nlJR\,;\, \nu_l)\rangle = \sum_{\{v\}}\sum_{n'}\sum_{l'}\sum_{J'}\sum_{R'} w(nlJR,\ \{v\}\,|\,n'l'J'R'\ \{v\}\ \nu_l w_{termic\breve{a}}). \tag{11.193}$$

Pe baza relațiilor cunoscute din fizica statistică, probabilitatea $w_{termic\breve{a}}\ (n'l'J'R', \{v\})$ este dată de relația

$$w_{termic\breve{a}}\ (n'l'J'R', \{v\}) = Z^{-1}\, d_{\{v\}}\, g_{n'l'J'R'}\ \mathrm{e}^{-\beta E(n'l'J'R', \{v\})} \tag{11.194}$$

În relația (11.194) $\beta = \dfrac{\hbar}{kT}$, $d_{\{v\}}$ reprezintă degenerarea nivelelor de vibrație

$$d_{\{v\}} = \frac{1}{8}(v_2 + 1)(v_4 + 1)(v_4 + 2)(v_5 + 1)(v_5 + 2)(v_6 + 1)(v_6 + 2) \tag{11.195}$$

iar Z este funcția de partiție

$$Z = \sum_{\{v\}}\sum\sum_{l'}\sum_{J'}\sum_{R'} d_{\{v\}}\, g_{n'l'J'R'}\ \mathrm{e}^{-\beta E(n'l'J'R', \{v\})}. \tag{11.196}$$

12. GENERAREA ARMONICILOR OPTICE

12.1. Generarea armonicii a doua

Primul experiment de generare a armonicii a doua a fost făcut cu un laser cu argon ($\lambda = 6940$ Å) folosindu-se o placă de cuarț drept element neliniar [101]. S-a constatat că în radiația emergentă se găsește și o radiație cu $\lambda = 3470$Å cu un raport de conversie de 10^{-8}. În prezent folosindu-se pentru excitare laseri de mare putere și respectîndu-se legile de conservare s-au obținut rapoarte de conversie mult mai mari.

12.1.1. Aproximația undei plane

Procesul de generare a armonicii a doua poate fi analizat cu ajutorul ecuațiilor cuplate de amplitudine deduse în cazul interacției a trei unde plane [17] pentru care se consideră $\omega_1 = 2\omega_2$ și $\omega_2 = \omega_3$. Natura condițiilor experimentale dă posibilitatea neglijării la intrare a undei cu frecvența armonicii $\omega_1 = 2\omega_2$. Presupunînd că mediul neliniar este transparent la frecvența ω_1 și că pierderile de putere prin conversie sînt nule (datorită raportului mic de conversie experimental), prin integrarea sistemului celor două ecuații cuplate de amplitudine [17] (deoarece intervin numai două frecvențe diferite) se obține pentru un parcurs prin mediul neliniar de lungime l, amplitudinea cîmpului de frecvența armonicii la ieșire

$$E_{\alpha_1}(l) = -\mathrm{i}\omega_1 K E^*_{\alpha_2} E \frac{e^{\mathrm{i}\Delta k l} - 1}{\mathrm{i}\Delta k} \tag{12.1}$$

unde $K = \frac{\varepsilon_0}{2}\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon}}\chi_{\alpha_1\alpha_2\alpha_3}$, este un coeficient neliniar, iar $\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3$ reprezintă dezacordul vectorilor de undă. Definind puterea undei cu frecvența armonicii a doua prin relația

$$P(2\omega) = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{\varepsilon}{\mu_0}} E_{\alpha_1} E^*_{\alpha_1} \sin^2\theta \tag{12.2}$$

unde θ reprezintă unghiul dintre direcția de propagare și direcția α rezultă modul de variație al acesteia la ieșire

$$P(2\omega) \sim P^2(\omega)\, l^2 \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k l}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k l}{2}\right)^2}. \tag{12.3}$$

Din relația (12.2) rezultă o putere maximă a armonicii la ieșire dacă este satisfăcută condiția de adaptare a vectorilor de undă (indicilor de refracție)

$$\Delta \mathbf{k} = 0 \tag{12.4}$$

care în cazul descris mai sus devine

$$\mathbf{k}_{\alpha_1} = \mathbf{k}_{\alpha_2} + \mathbf{k}_{\alpha_3}. \tag{12.5}$$

Dacă condiția de adaptare a indicilor este satisfăcută, puterea la ieșire va fi proporțională cu pătratul lungimii cristalului

$$P(2\omega) \sim l^2. \tag{12.6}$$

Dacă această condiție nu este îndeplinită, puterea la ieșire va trece printr-o succesiune de maxime și minime, funcție de lungimea cristalului l, separate prin distanța

$$l_c = \frac{\pi}{\Delta k} \tag{12.7}$$

numită „lungime de coerență".

Condiția de adaptare a indicilor nu se produce în mod normal deoarece mediile sînt dispersive ($n = n(\omega)$), pentru o polarizare dată. Se poate arăta că această condiție se poate îndeplini satisfăcător dacă se folosesc cristale birefringente și alegînd corespunzător direcția de propagare, precum și stările de polarizare ale cîmpurilor care interacționează. Astfel în cazul generării armonicii a doua într-un cristal de KDP (KH_2PO_4) condiția de adaptare a indicilor pentu cele două componente ale cîmpului de frecvență ω_2 care au polarizările α_2 și α_3 și se propagă cu aceeași viteză de fază, devine

$$k_{\alpha_1}^{(2\omega)} = 2k_{\alpha_2}^{(\omega)}. \tag{12.8}$$

Cu notația

$$k_{\alpha_n}^{(\omega)} = \frac{\omega n^{(\omega)}(\theta)}{c} \tag{12.9}$$

relația (12.8) se scrie

$$n_{\alpha_1}^{(2\omega)}(\theta) = n_{\alpha_2}^{(\omega)}(\theta). \tag{12.10}$$

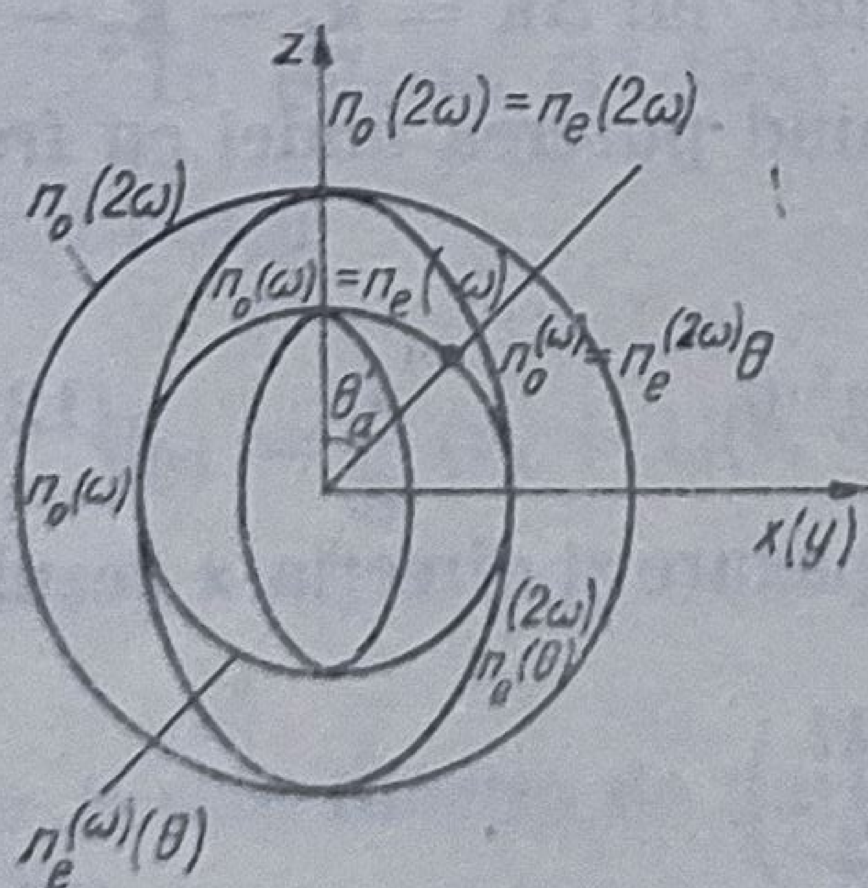


Fig. 12.1

Relația (12.10) evidențiază dependența indicelui de refracție de direcția de propagare, proprietate cunoscută a cristalelor anizotrope uniaxe, categorie din care face parte și cristalul de KDP (θ este unghiul făcut de direcția de propagare cu axa optică z).

În figura 12.1 se reprezintă grafic suprafețele normale ale indicilor de refracție pentru undele ordinară și extraordinară în cristalul de KDP (uniax negativ) la frecvențele ω și 2ω. Deoarece cristalul de KDP este uniax negativ

$$n_e^{(\omega)} \leqslant n_0^{(\omega)} \tag{12.11}$$

este posibilă îndeplinirea condiției (12.10) pentru $\theta = \theta_a$, unde θ_a reprezintă „unghiul de adaptare''. Deci adaptarea indicilor se obține dacă fasciculul de intrare de frecvență ω este polarizat ca rază ordinară, iar fasciculul de frecvența armonicii este polarizat ca rază extraordinară și ambele se propagă în aceeași direcție θ. Din condiția

$$n_e^{(2\omega)}(\theta_a) = n_0^{(\omega)}(\theta_a) \tag{12.12}$$

se poate calcula valoarea unghiului θ_a. Pentru aceasta relația (12.12) se scrie sub forma

$$\left[\frac{1}{n_e^{(2\omega)}(\theta_a)}\right]^2 = \left[\frac{1}{n_0^{(\omega)}(\theta_a)}\right]^2. \tag{12.13}$$

Valoarea indicelui de refracție $n_e^{(2\omega)}(\theta)$ al undei extraordinare după direcția θ se poate obține scriind ecuația elipsei de intersecție dintre elipsoidul indicilor pentru cristale uniaxe

$$\frac{X^2}{n_0^2} + \frac{Y^2}{n_0^2} + \frac{Z^2}{n_e^2} = 1 \tag{12.14}$$

și planul care trece prin origine și este perpendicular pe direcția de propagare dat de ecuația

$$\mathbf{rk} = 0 \tag{12.15}$$

unde $\mathbf{k}$ este direcția de propagare.

Ecuația elipsei de intersecție în coordonate polare este dată de expresia

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2\theta}{n_0^2} + \frac{\sin^2\theta}{n_e^2}. \tag{12.16}$$

Introducînd valoarea lui $n_e(\theta)$ dată de relația (12.16) în condiția de adaptare a indicilor (12.13) se obține pentru sinusul unghiului de adaptare formula

$$\sin\theta_a = \sqrt{\frac{(n_0^{(\omega)})^{-2} - (n_0^{(2\omega)})^{-2}}{(n_e^{(2\omega)})^{-2} - (n_0^{(2\omega)})^{-2}}}. \tag{12.17}$$

În cazul particular al cristalului de KDP, folosindu-se valorile $n_e^{(\omega)} = 1{,}466$, $n_e^{(2\omega)} = 1{,}487$, $n_0^{(\omega)} = 1{,}506$, $n_0^{(2\omega)} = 1{,}543$ se obține $\theta_a = 50{,}4°$.

O altă soluție pentru adaptarea indicilor în KDP corespunde cazului în care una din componentele cîmpului fasciculului de intrare specificată de indicii α_2 sau α_3 este o undă polarizată ca rază ordinară, iar cealaltă de aceeași frecvență, este polarizată ca rază extraordinară.

Condiția de adaptare a indicilor se scrie în acest caz sub forma

$$n_{\alpha_1}^{(2\omega)}(\theta) = \frac{1}{2}\left[n_{\alpha_2}^{(\omega)}(\theta) + n_{\alpha_3}^{(\omega)}(\theta)\right] \tag{12.18}$$

sau sub forma echivalentă

$$\left[\frac{\cos^2(\theta_a)}{(n_0^{(2\omega)})^2} + \frac{\sin^2(\theta_a)}{(n_e^{(2\omega)})^2}\right]^{-1/2} = \frac{1}{2}\left\{n_0^{(\omega)} + \left[\frac{\cos^2(\theta_a)}{(n_0^{(\omega)})^2} + \frac{\sin^2(\theta_a)}{(n_e^{(\omega)})^2}\right]^{-\frac{1}{2}}\right\} \tag{12.19}$$

În figura 12.2 se indică într-un sistem de axe rectangulare direcţia de propagare a fasciculului prin cristal, determinată de unghiurile θ_a şi φ_a.

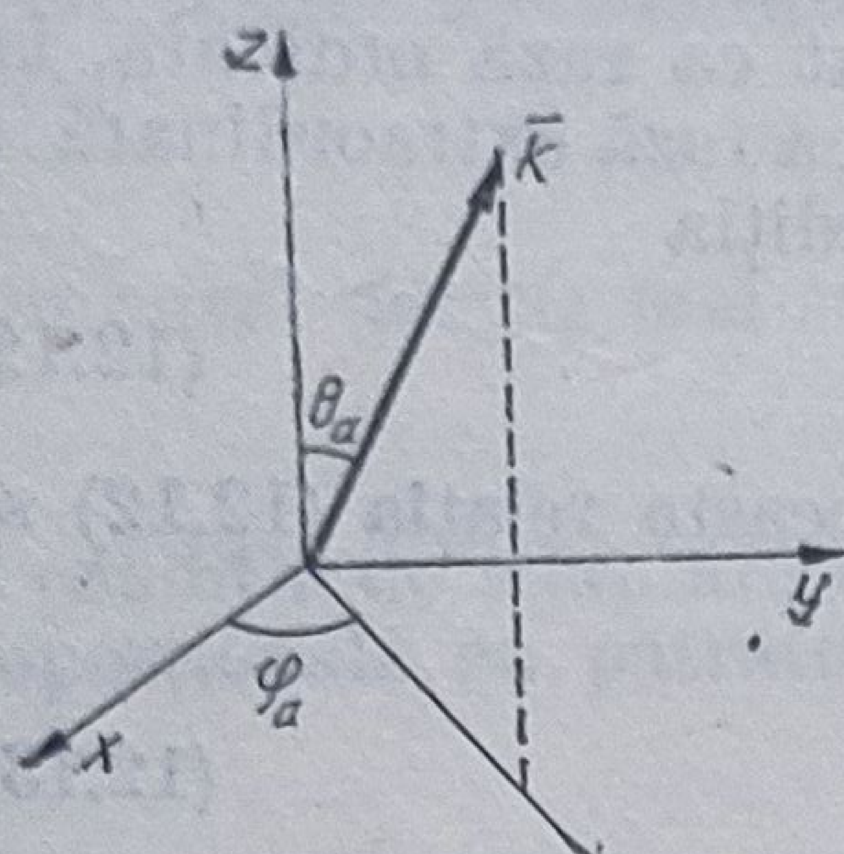


Fig. 12.2.

Expresia amplitudinii cîmpului electric corespunzătoare armonicii a doua mai poate fi obţinută în aproximaţia undei plane şi a fasciculelor gaussiene prin metoda funcţiei Green [158]. Metodele teoretice de tratare a generării armonicii a doua în cristale, care sînt prezentate în lucrările [110, 158] au la bază interacţiile parametrice ale undelor şi se aplică cel mai bine în cazul utilizării pentru generare a laserilor în impulsuri de mare putere.

Armonica a doua mai poate fi generată şi cu ajutorul laserilor în regim de undă continuă a căror putere nu este prea mare. În acest caz, conversia poate să crească cu cîteva ordine de mărime dacă se utilizează fascicule gaussiene [157].

12.1.2. Generarea armonicii a doua în cristale prin metoda focalizării fasciculului laser

Dacă generarea armonicii a doua are loc prin focalizarea unui fasicul laser pe un cristal (de exemplu KDP, ADP) atunci pentru calculul puterii armonicii la ieşire trebuie luată în considerare atît forma fasciculului laser, cît şi proprietăţile birefringente ale cristalului în care are loc generarea armonicii. Din cauza extensiei finite a fasciculului laser, acesta poate fi reprezentat ca o sumă de unde plane sau prin componentele Fourier respective. Intensitatea fasciculului laser care este focalizat pe cristal nu este uniformă astfel că polarizarea neliniară are valori semnificative numai într-o mică regiune din interiorul cristalului corespunzătoare focarului, care nu depinde decît de proprietăţile de simetrie ale fasciculului laser. Proprietăţile birefringente ale cristalului joacă un rol important în cazul folosirii tehnicilor de adaptare a indicilor. Întrucît nu este posibilă adaptarea perfectă a indicilor, pentru toate componentele undei, în vederea optimizării interacţiilor se urmăreşte ca adaptarea să aibă loc numai pentru fundamentală şi armonica a doua.

Chiar şi în acest caz există o limitare cauzată de existenţa unor direcţii diferite ale vectorului Poynting corespunzător fundamentalei şi respectiv armonicii care este o undă extraordinară, iar dubla refracţie limitează distanţa pentru care fundamentala şi armonica se suprapun.

Pentru a determina condiţiile în care puterea armonicii a doua este maximă, se consideră un cristal birefringent negativ ($n_0 > n_e$) excitat de modul transversal fundamental al unui fascicul laser care se propagă de-a lungul axei z şi este focalizat în centrul cristalului de lungime l ca în fig. 12.3.

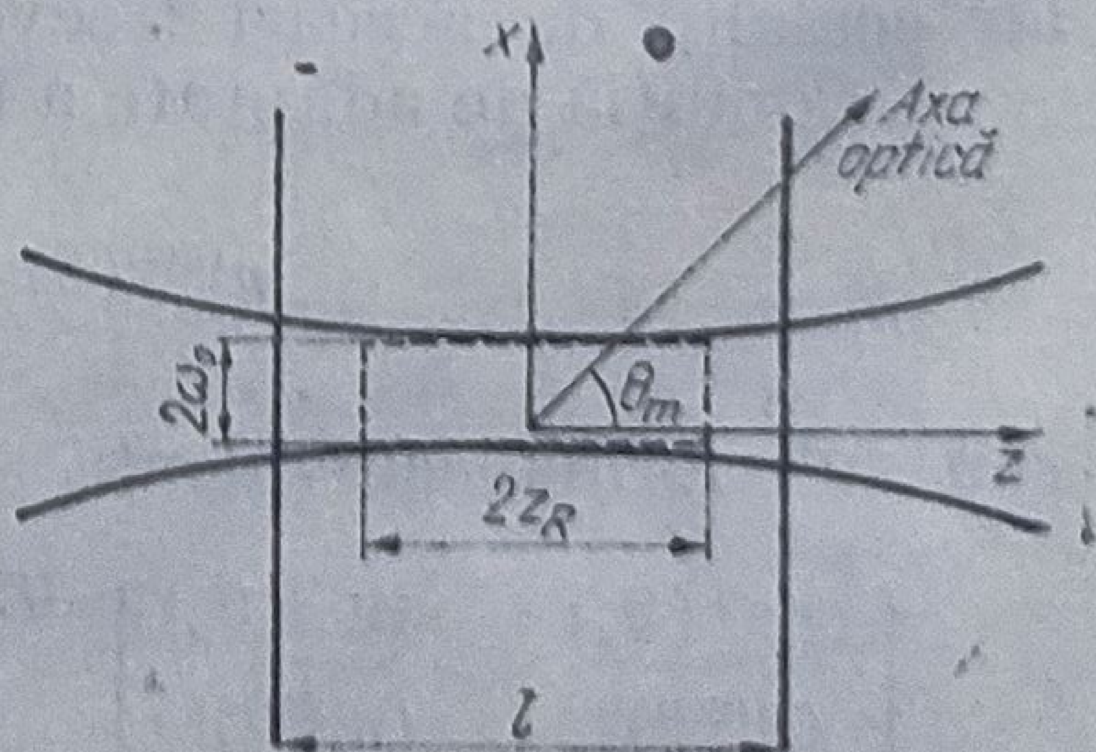


Fig. 12.3

Feţele de intrare şi ieşire ale cristalului sînt paralele şi sînt tăiate astfel încît la incidenţă normală, fasciculul laser să

treacă prin cristal după o direcție pentru care să poată fi îndeplinită condiția de adaptare a indicilor și care face cu axa optică un unghi θ_m.

În planul focal, la $z = 0$, cîmpul electric al radiației laser este polarizat de-a lungul axei y și este dat de relația [17]

$$\mathbf{E}(x,\ y,\ z = 0) = \mathbf{j}E_\omega \exp\left[-(x^2 + y^2)/w_0^2\right]. \tag{12.20}$$

În relația (12.20) w_0 reprezintă lărgimea fasciculului în planul focal corespunzătoare distanței la care intensitatea fasciculului scade de e^2 ori față de valoarea sa de pe axă. Transformata Fourier a cîmpului din relația (12.20) este

$$\mathbf{E}(k_x,\ k_y,\ k_z) = \mathbf{j}E_\omega\left(\frac{1}{2}w_0^2\right)e^{-w_0^2 k_T^2/4}\,\delta[k_z - k_1(1 - k_T^2/k_1^2)^{1/2}] \tag{12.21}$$

unde $k_T^2 = k_x^2 + k_y^2$, iar $\delta(x)$ este funcția delta a lui Dirac. Pentru ca relația (12.21) să fie valabilă trebuie ca apertura fasciculului să fie mult mai mare decît lungimea de undă a radiației laser, adică

$$\frac{1}{2}k_1 w_0 \gg 1. \tag{12.22}$$

Transformata Fourier inversă aplicată relației (12.21) conduce la următoarea expresie pentru cîmpul electric din interiorul cristalului

$$\mathbf{E}(x,\ y,\ z) = \mathbf{j}E_\omega e^{ik_1 z}\frac{\exp\{-[(x^2 + y^2)/w_0^2(1 + \xi^2)](1 - i\xi)\}}{1 - i\xi} \tag{12.23}$$

unde

$$\xi = \frac{2z}{k_j w_0^2} = \frac{z}{z_R} \tag{12.24}$$

iar z_R este parametrul confocal notat și cu b_1.

Polarizarea neliniară de ordinul doi indusă într-o regiune din jurul planului focal, determinată de parametrul confocal b_1 este legată de cîmpul electric al fundamentalei prin relația

$$P_{z'}^{2\omega} = \chi^{(2)} E_\omega^2\, e^{2ik_1 z}(1 + i\xi)^{-2}\exp\left[-2\frac{x^2 + y^2}{w_0^2(1 + i\xi)}\right] \tag{12.25}$$

unde $\chi^{(2)}$ reprezintă susceptibilitatea neliniară de ordinul doi. Pentru a calcula cîmpul armonicii, polarizarea de ordinul doi se descompune într-o sumă de unde plane corespunzătoare, efectuîndu-se totodată, transformatele Fourier pentru fiecare în parte. Astfel, polarizarea de ordinul doi se scrie

$$P_{z'}^{2\omega}(\mathbf{r}) = \int_{-\infty}^{+\infty} P_{z'}(\mathbf{K})\, e^{i\mathbf{K}\mathbf{r}}\, d^3K \tag{12.26}$$

iar

$$P_{z'}(\mathbf{K}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int_{-\infty}^{+\infty} P_{z'}^{2\omega}(\mathbf{r})\ e^{-i\mathbf{K}\mathbf{r}}\ d^3r. \tag{12.27}$$

Transformata Fourier a polarizării de ordinul doi este

$$P_{z'}(\mathbf{K}) = \begin{cases} (\chi E_{\omega}^2/16\,\pi)\ k_1 w_0^4\ e^{-(2k_1 - K_z)\ k_1 w_0^2/2} & \text{pentru } (2k_1 - K_z)\ k_1 \geqslant \frac{1}{4} K_T^2 \geqslant 0 \quad (12.28) \\ 0 & \text{pentru rest} \quad (12.29) \end{cases}$$

unde $K_T^2 = K_x^2 + K_y^2$ (**K** este vectorul de undă al armonicii a doua) (12.30)

Fiecare undă corespunzătoare unei componente a polarizării

$$P_K(\mathbf{r}) = P(\mathbf{K})\ e^{i(\mathbf{K}\mathbf{r} - 2\omega t)} \tag{12.31}$$

generează o armonică de forma

$$\mathbf{E}_K(\mathbf{r}) = z' g(2i\psi_K)\ \gamma_K \mathbf{P}(\mathbf{K})\ e^{i(\mathbf{K}\mathbf{r} - 2\omega t)} \tag{12.32}$$

unde: $z' = z + \frac{1}{2}$ reprezintă distanța de la fața de intrare a cristalului,

$$g(x) = (1 - e^{-x})/x = \int_0^1 e^{px}\ dp\ , \tag{12.33}$$

$$2\psi_K \simeq (K_z - 2k_1 - \alpha K_x)\ z' + (K_T^2/4k_1)\ z' \tag{12.34}$$

este funcția de dezacord, iar

$$\gamma_K \mathbf{P}(\mathbf{K}) = 4\pi i \frac{\omega}{n_2 c} \mathbf{1}_e P_z'(\mathbf{K}) \cdot \frac{\sin(\theta m + \alpha_K + \Delta\theta)}{\cos^2 \alpha_K \cos\Delta\theta - \frac{1}{2} \sin 2\,\alpha_K \sin\Delta\theta} \tag{12.35}$$

În relațiile de mai sus $\mathbf{1}_e$ este un vector unitate care determină polarizarea corespunzătoare undei extraordinare, n_2 este indicele de refracție al undei extraordinare de frecvență 2ω, iar α_K este unghiul dintre direcția de propagare a energiei și respectiv a fazei pentru o rază extraordinară („unghiul dublei refracții").

Folosind transformata Fourier inversă

$$\mathbf{E}_{2\omega} = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{E}_K(\mathbf{r})\ d^3K \tag{12.36}$$

cîmpul armonicii a doua, este dat de relația

$$\mathbf{E}_{2\omega}(r) = \mathbf{1}_e E_{2\omega}\ e^{i2k_1 z} \cdot \frac{z'}{b_1 + iz} \int_0^1 dp \cdot \frac{\exp\{-[k_1/(b_1 + iz)] \cdot [y^2 + (x + \alpha z' p)^2]\}}{(b_1 + iz - ipz')} \tag{12.37}$$

în care :

$$E_{2\omega} = \pi i k_1^2 w_0^4 \frac{\omega}{n_1 c} \chi^{(2)} E_\omega^2 \frac{\sin(\theta_m + \alpha)}{\cos^2 \alpha}. \tag{12.38}$$

Puterea totală a armonicii a doua la ieșirea din cristal, calculată cu ajutorul cîmpului dat de relația (12.38) devine

$$P_{2\omega} = \frac{128\pi^2\omega^2}{n_1 c^3} P_\omega^2 \frac{\sin^2(\theta_m + \alpha)}{\cos^2 \alpha} (\chi^{(2)})^2 \frac{l^2}{w_0^2} f(w_0, l, \alpha) \tag{12.39}$$

unde

$$f(w_0, l, \alpha) = \int_0^1 dp \int_0^1 dp' \cdot \frac{\exp[-(\alpha^2 l^2/w_0^2)(p - p')^2]}{\left[1 - i(l/b_1)\left(p - \frac{1}{2}\right)\right]\left[1 + i(l/b_1)\left(p' - \frac{1}{2}\right)\right]}. \tag{12.40}$$

Pentru calculul numeric al puterii armonicii este mai convenabil ca funcția $f(w_0, l, \alpha)$ să fie exprimată în termeni reali sub forma

$$f(w_0, l, \alpha) = \int_0^1 dp \int_0^1 dp' \times$$

$$\times \frac{\left[1 + \left(\frac{l}{b_1}\right)^2 \left(p - \frac{1}{2}\right)\left(p' - \frac{1}{2}\right)\right] \exp\left[-\frac{\alpha^2 l^2}{w_0^2}(p - p')^2\right]}{\left[1 + \left(\frac{l}{b_1}\right)^2 \left(p - \frac{1}{2}\right)^2\right]\left[1 + \left(\frac{l}{b_1}\right)^2 \left(p' - \frac{1}{2}\right)^2\right]}. \tag{12.41}$$

Definind prin

$$l_\alpha = \frac{w_0}{\alpha} \tag{12.42}$$

distanța maximă pentru care interacția dintre fundamentală și armonică este cumulativă, pentru o putere fixată a fundamentalei la intrare, puterea armonicii devine

$$P_{2\omega} \sim g(b_1, l, l_\alpha) \sim (l_\alpha l_c / w_0^2) \tag{12.43}$$

unde l_c reprezintă lungimea de coerență, iar

$$g(b_1, l, l_\alpha) = \frac{l^2}{w_0^2} f(w_0, l, \alpha). \tag{12.44}$$

În funcție de lungimea cristalului există mai multe cazuri particulare :

1°. $l \ll b_1$; $l \ll l_\alpha$. În acest caz fasciculul gaussian poate fi asimilat cu unul cilindric, efectele de birefringență se neglijează,

$$g \simeq \frac{l^2}{w_0^2}, \tag{12.45}$$

iar formula puterii este aceeași cu cea obținută în aproximația undei plane (12.6);

2°. $l_\alpha \ll l \ll b_1$. Pentru acest domeniu, fasciculul laser are caracteristicile undei plane dar integrala dublă nu mai poate fi neglijată. Din relațiile (12.40) și (12.44) se obține

$$g(b_1,\ l,\ l_\alpha) \simeq \sqrt{\pi}(l/w_0\alpha); \tag{12.46}$$

3°. $l_\alpha \ll b_1 \ll l$. Acest caz corespunde focalizării intense și numai o mică parte din cristal radiază armonica a doua. Calculele teoretice conduc la următoarea valoare pentru funcția $g(b_1,\ l,\ l_\alpha)$

$$g(b_1,\ l,\ l_\alpha) \simeq \sqrt{\pi}\,(k_1 w_0/\alpha); \tag{12.47}$$

4°. $b_1 \ll l$; $b_1 \ll l_\alpha$. Din cauza focalizării și mai intense a fasciculului, dubla refracție poate fi neglijată, iar

$$g(b_1,\ l,\ l_\alpha) = \frac{1}{4}\,\pi^2 k_1^2 w_0^2. \tag{12.48}$$

Dependența funcției $\log g(z_R,\ l,\ l_\alpha)$ de $\log w_0$ corespunzătoare celor patru regiuni este prezentată în fig. 12.4.

Întrucît puterea armonicii este afectată de efectele de dublă refracție, pentru ca aceste efecte să dispară trebuie ca lungimea cristalului să îndeplinească condiția

$$l < l_b\,\frac{2}{k_1\alpha^2}. \tag{12.49}$$

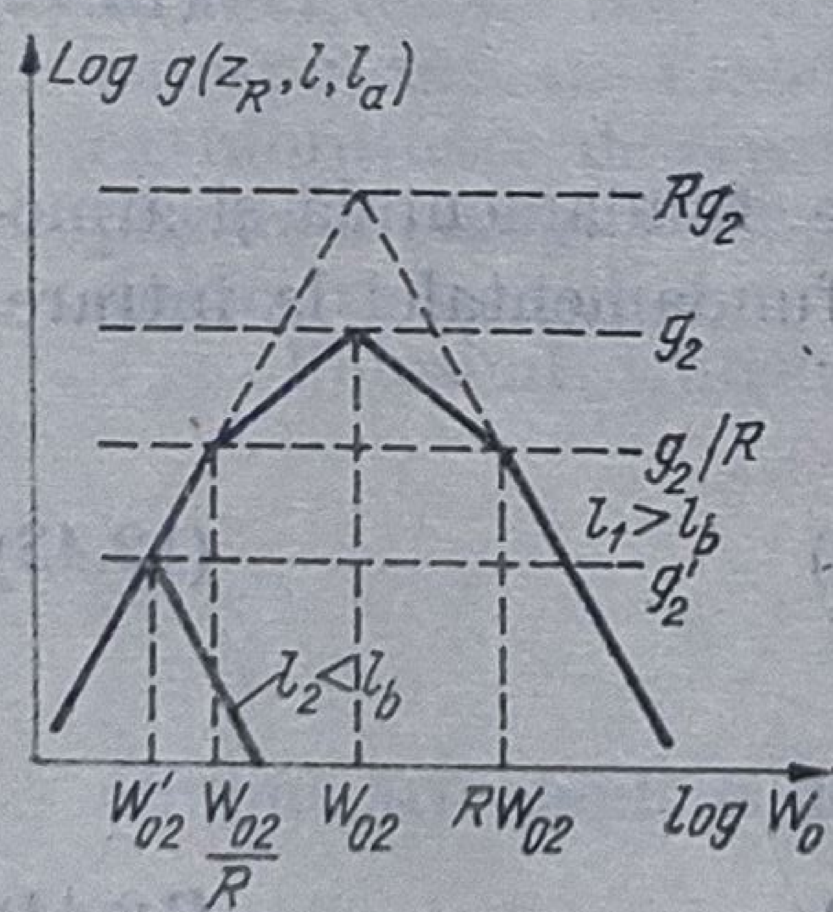


Fig. 12.4.

Dacă efectele legate de dubla refracție pot fi neglijate, puterea armonicii a doua este maximă pentru următoarele valori ale lungimii cristalului

$$[P_{2\omega}]_{max} \begin{cases} \sim l & \text{pentru } l < l_b \quad (12.50) \\ \sim l^{1/2} & \text{pentru } l > l_b. \quad (12.51) \end{cases}$$

Focalizarea optimă este determinată numai de lungimea cristalului, adică

$$b_1 = l/\pi. \tag{12.52}$$

Eficiența generării armonicii depinde de mai mulți factori: puterea fundamentalei, mărimea susceptibilității neliniare de ordinul doi (numită și coeficient neliniar), lungimea cristalului, gradul de focalizare al fasciculului fundamental.

Din punct de vedere teoretic [157] se poate arăta că prin introducerea cristalului în interiorul cavității laser, în anumite condiții, puterea maximă a armonicii a doua este egală cu puterea maximă pe care o poate produce laserul. Pentru a determina aceste condiții, se consideră un cristal neliniar introdus într-o cavitate laser determinată de oglinzile O_1 și O_2 ca în fig. 12.5.

Ținînd seama de expresia coeficientului de cîștig în mediul laser de lungime l [167]

$$g = \frac{g_0}{1 + \frac{P}{P_0}} \tag{12.53}$$

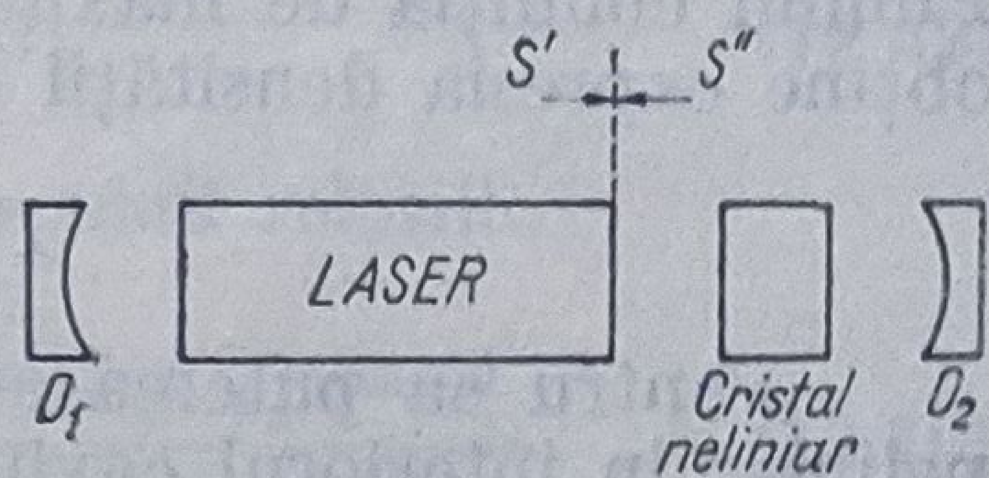


Fig. 12.5.

unde g_0 este cîștigul la semnul mic, P este densitatea de putere totală a fundamentalei, iar P_0 cea corespunzătoare saturației, se poate calcula densitatea de putere a fundamentalei în interiorul cavității, pentru o stare staționară cu ajutorul relației

$$\frac{2g_0}{1 + \frac{2P^+}{P_0}} = L + KS^+. \tag{12.54}$$

Pentru deducerea relației (12.54) s-a considerat că prin introducerea mediului neliniar în cavitate coeficientul de reflexie R' depinde liniar de densitatea de putere a radiației incidente P^+ și de coeficientul neliniar K, adică

$$R' = R - KP^+ \tag{12.55}$$

R fiind coeficientul de reflexie liniar (de semnul mic). Densitatea de putere a radiației reflectate este

$$P^- = R'P^+ \tag{12.56}$$

iar în interiorul cavității laser se poate considera că

$$P = P^- + P^+ \simeq 2P^+. \tag{12.57}$$

În relația (12.54), L reprezintă pierderile liniare ale fundamentalei în urma unei duble treceri prin cavitate, care sînt determinate de transmisia, împrăștierea și absorbția acesteia pe oglinzi și în mediul neliniar, iar KP^+ corespunde pierderilor neliniare. Introducînd notațiile

$$\alpha = \frac{L}{2g_0 l} \tag{12.58}$$

$$\xi = \frac{KP_0}{4g_0 l} \tag{12.59}$$

corespunzătoare pierderilor (α) și neliniarităților (ξ) normate se poate calcula cu ajutorul relației (12.54) puterea disponibilă pentru armonica a doua, ca fiind egală cu fracțiunea din densitatea de putere a fundamen-

talei „pierdută'' datorită efectelor neliniare, sub forma

$$K(P^+)^2 = (g_0 l P_0)\frac{[\sqrt{(\alpha-\xi)^2+4\xi}-(\alpha+\xi)]^2}{4\xi}. \qquad (12.60)$$

Punînd condiția de maxim în raport cu variabila ξ în relația (12.60) se obține expresia densității de putere maxime a armonicii a doua

$$P_{2\,max} = g_0 l P_0 (1-\sqrt{\alpha})^2. \qquad (12.61)$$

Pentru ca puterea armonicii generate prin introducerea cristalului neliniar în interiorul cavității să fie maximă trebuie ca pierderile să fie reduse la minimum. Aceasta se poate realiza prin plasarea unei oglinzi în interiorul cavității laser care să reflecte armonica astfel încît întreaga putere a armonicii să fie concentrată într-o singură direcție.

Astfel, conform montajului din fig. 12.6 oglinda O_b reflectă atît fundamentala cît și armonica în timp ce oglinda O_a este transparentă pentru fundamentală și reflectă armonica. Întrucît fazele și mărimile undelor reflectate sînt determinante în bilanțul puterilor, coeficienții de reflexie ai diferitelor suprafețe trebuie definiți cu ajutorul cîmpului electric.

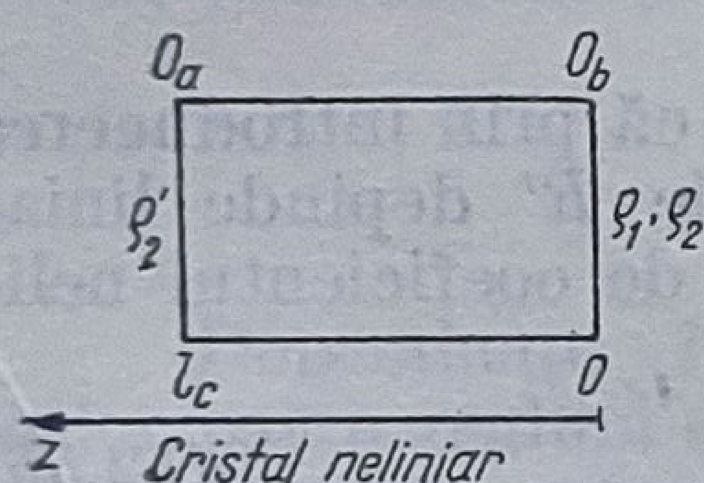


Fig. 12.6.

Oglinda O_b are un coeficient de reflexie pentru fundamentală $\rho_1 = r_1 e^{i\varphi_1}$, iar pentru armonică $\rho_2 = r_2 e^{i\varphi_2}$, iar coeficientul de reflexie al puterii $R = |\rho|^2$. Similar, pentru oglinda O_a coeficientul de reflexie pentru armonică este $\rho_2' = r_2' e^{i\varphi_2'}$.

Întrucît oglinzile O_a și O_b sînt plasate pe suprafețele cristalului nu există alte pierderi care să modifice factorul de fază φ. Expresiile cîmpurilor incidente și reflectate ale fundamentalei și respectiv armonicii a doua sînt date de relațiile

$$E_{i_1} = \frac{1}{2}[E_1 e^{i(\omega_1 t + k_1 z)} + \text{c.c.}] \qquad (12.62)$$

$$E_{r_1} = \frac{1}{2}[\rho_1 E_1 e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + \text{c.c.}] \qquad (12.63)$$

$$E_{i_2} = \frac{1}{2}[E_2^-(z) e^{i(\omega_2 t + k_2 z)} + \text{c.c.}] \qquad (12.64)$$

$$E_{r_2} = \frac{1}{2}[E_2^+(z) e^{i(\omega_2 t - k_2 z)} + \text{c.c.}]. \qquad (12.65)$$

Introducînd relațiile (12.62)—(12.65) în ecuațiile lui Maxwell se obțin următoarele ecuații pentru componentele $E_2^+(z)$ și $E_2^-(z)$

$$\frac{\partial}{\partial z} E_2^-(z) = iB\, e^{i\Delta k z} \qquad (12.66)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} E_2^+(z) = -iB\rho_1^2\, e^{-i\Delta k z} \qquad (12.67)$$

unde $B = \dfrac{\mu_0 \omega_1^2 d E_1^2}{2k_2}$, iar $\Delta k = 2k_1 - k_2$ reprezintă dezacordul vectorilor de undă. Prin integrarea sistemului de ecuații (12.66), (12.67) cu condițiile

$$E_2^+(0) = \rho_2 E_2^-(0) \tag{12.68}$$

$$E_2^-(l) = \rho_2' \, e^{-i2k_2 l} \, E_2^+(l) \tag{12.69}$$

se obțin pentru cele două componente ale armonicii relațiile

$$E_2^+(l) = -\,iBl \frac{\sin(\Delta kl/2)}{\Delta kl/2} \cdot \frac{\rho_1^2 \, e^{-i\Delta kl/2} + \rho_2 \, e^{i\Delta kl/2}}{1 - \rho_2 \rho_2' \, e^{-i2k_2 l}} \tag{12.70}$$

$$E_2^-(0) = -\,iBl \frac{\sin(\Delta kl/2)}{\Delta kl/2} \cdot \frac{e^{i(k_2 + \Delta k/2)} + \rho_1^2 \rho_2' \, e^{-i(k_2 + \Delta k/2)}}{1 - \rho_2 \rho_2' \, e^{-i2k_2 l}} \cdot e^{-ik_2 l}. \tag{12.71}$$

Densitatea de putere a armonicii a doua, incidentă pe cele două oglinzi O_a și O_b fiind proporțională cu pătratul amplitudinii cîmpului este dată de o expresie de forma

$$P_2^+(l) \sim B^2 l^2 \left(\frac{\sin \dfrac{\Delta kl}{2}}{\dfrac{\Delta kl}{2}} \right)^2 \frac{(r_1 + r_2)^2 - 4r_1^2 r_2 \sin^2(\Delta kl/2 + \varphi_2/2 - \varphi_1)}{(1 - r_2 r_2')^2 + 4r_2 r_2' \sin^2 \left[k_2 l - \dfrac{1}{2}(\varphi_2 + \varphi_2') \right]} \tag{12.72}$$

$$P_2^-(0) \sim B^2 l^2 \left(\frac{\sin \dfrac{\Delta kl}{2}}{\dfrac{\Delta kl}{2}} \right)^2 \frac{(1 + r_1^2 r_2')^2 - 4r_1^2 r_2' \sin^2 [(k_2 + \Delta k/2)l - \varphi_1 - \varphi_2'/2]}{(1 - r_2 r_2')^2 + 4r_2 r_2' \sin^2 \left[k_2 l - \dfrac{1}{2}(\varphi_2 + \varphi_2') \right]}. \tag{12.73}$$

Dacă generarea armonicii a doua are loc la rezonanță [461] trebuie îndeplinite condițiile

$$r_2,\ r_2' \simeq 1 \tag{12.74}$$

$$\sin^2 \left[k_2 l - \frac{1}{2}(\varphi_2 + \varphi_2') \right] = 0. \tag{12.75}$$

Pentru a determina condițiile în care puterea armonicii devine maximă se pot considera două cazuri limită:

1°. oglinda O_b este transparentă pentru armonică ($r_2 = 0$) și numai oglinda O_a reflectă radiațiile (fundamentala și armonica) ($r_1' \simeq 1$);

2°. oglinda O_a este transparentă ($r_2 \simeq 1$) și oglinda O_b reflectă ($r_2' = 0$). Expresiile puterii armonicii a doua corespunzătoare radiației

incidente și respectiv transmise devin

$$P_2^-(0) \sim 4B^2l^2 \left(\frac{\sin \frac{\Delta kl}{2}}{\frac{\Delta kl}{2}} \right)^2 \cos^2 \left[(k_2 + \Delta k/2)\, l - \varphi_1 - \frac{\varphi_2'}{2} \right] \tag{12.76}$$

pentru cazul 1° și

$$P_2^+(l) \sim 4B^2l^2 \left(\frac{\sin \frac{\Delta kl}{2}}{\frac{\Delta kl}{2}} \right)^2 . \cos^2 \left[\frac{\Delta kl}{2} + \frac{\varphi_2}{2} - \varphi_1 \right] \tag{12.77}$$

pentru cazul 2°.

Din condiția de maxim se obține pentru parametrul neliniar K corespunzător unui singur mod longitudinal valoarea

$$K = 2K_m \left[\frac{\sin \left(\frac{\Delta kl}{2} \right)}{\frac{\Delta kl}{2}} \right]^2 . \tag{12.78}$$

În relația (12.78)

$$K_m = 4 \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \right)^{1/2} \frac{\omega_1^2\, d^2 l^2}{n_1^2 n_2^2 c^2}\, f \tag{12.79}$$

$$f = \frac{P_{i1}}{P^+} \tag{12.80}$$

iar P_{i1} reprezintă densitatea de putere incidentă a fundamentalei.

Prin introducerea în cavitate a oglinzii care reflectă armonica crește coeficientul neliniar de două ori pentru că se adună (cuplează) cîmpurile într-o singură direcție și nu puterile.

Creșterea puterii armonicii se mai poate obține acționînd și asupra altor factori ca : temperatura cristalului, lărgimea benzii laserului, fazele coeficienților de reflexie ai oglinzilor. Maximul puterii poate fi obținut dacă sînt satisfăcute condițiile

$$\Delta kl = 0 \tag{12.81a}$$

$$\varphi_2/2 - \varphi_1 = m\pi \; ; \; m = \text{întreg.} \tag{12.81b}$$

În cazul generării armonicii a doua cu ajutorul unui cristal de $Ba_2NaNb_5O_{15}$ care este excitat de un laser Nd : YAG cu $\lambda = 1{,}06$ µm s-a găsit că lungimea necesară a cristalului pentru a obține un cuplaj optim este dată de relația

$$l(\text{cm}) = \left(2{,}7 \cdot 10^2 \frac{L}{f} \cdot \right)^{1/2} \tag{12.82}$$

Pentru cavități cu pierderi mici cuplajul optim se poate obține cu ajutorul unor cristale a căror lungimi sînt de 1 cm sau mai puțin.

Focalizarea fasciculelor pe cristale de dimensiuni mari prezintă dezavantaje legate de absorbția armonicii de către impurități, precum și de încălzirea locală a cristalului care conduce la limitarea conversiei.

În cazul folosirii focalizărilor mai puțin intense creșterea puterii se poate obține prin metode „mode-locking''.

12.2. Generarea armonicii a treia

Deși mediile neliniare cristaline prezintă unele avantaje incontestabile cum ar fi : susceptibilitate neliniară de ordinul doi $\chi^{(2)}$ mare, birefringență suficientă pentru a obține acordarea indicilor, calitate optică bună pe distanțe ~ 1 cm, posibilitatea folosirii fasciculelor intense, ele nu pot fi utilizate pentru obținerea radiației coerente în domeniul ultraviolet îndepărtat și al razelor X moi din cauza absorbției puternice.

Producerea radiației coerente în domeniul U.V. îndepărtat și al razelor X moi poate avea loc pe baza generării armonicilor de diferite ordine în medii gazoase. Mediile neliniare gazoase pot fi preparate ușor, au calitate optică bună pe distanțe mari, de ordinul zecilor de centimetri, nu suferă fenomenul de degradare atunci cînd se utilizează fascicule intense ca în cazul cristalelor și în plus prezintă o transparență bună atît în ultraviolet cît și în infraroșu. Obținerea eficiențelor de conversie ridicate se bazează pe posibilitatea acordării indicilor de refracție și pe creșterea susceptibilităților neliniare cu cîteva ordine de mărime la rezonanță.

În procesul de generare a armonicilor de ordine superioare se folosesc mai ales vaporii metalelor alcaline pentru că au susceptibilitatea neliniară cu cîteva ordine de mărime mai ridicată decît a altor gaze, cum ar fi, de exemplu, cele inerte.

Acordarea indicilor este posibilă pentru că vaporii metalelor alcaline constituie medii dispersive anormale pentru radiațiile incidente a căror frecvență este astfel aleasă încît să fie mai mică decît frecvența primei linii rezonante, iar frecvența armonicii să fie mai mare decît frecvența primei linii rezonante. Prin adăugarea unui gaz tampon (gaze nobile de exemplu) indicele de refracție al acestei mixturi poate deveni egal pentru fundamentală și respectiv armonică, astfel că procesul de generare al armonicii poate deveni cumulativ pe întreaga lungime a celulei cu gaz conducînd la o creștere substanțială a puterii armonicii la ieșire.

12.2.1. Aproximația undei plane

Descrierea procesului de generare a armonicii a treia se poate face în cadrul teoriei semicuantice cu ajutorul ecuațiilor de mișcare care guvernează tranzițiile de dipol electric. Într-un sistem cuantic cu două nivele, reprezentate prin stări de parități opuse ecuațiile polarizării și populațiilor se scriu sub forma [12]

$$\ddot{\mathbf{P}} + \frac{2}{T_2}\dot{\mathbf{P}} + \Omega^2 \mathbf{P} = -\frac{2\Omega}{h} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} N\mathbf{E} \qquad (12.83)$$

$$\dot{N} + \frac{N - N^e}{T_1} = 2\frac{1}{h}\dot{\mathbf{P}}\mathbf{E} \qquad (12.84)$$

$N = N_2 - N_1$ reprezentînd diferența de populație pe unitatea de volum. În prima aproximație se poate presupune că intensitatea cîmpului electric de frecvența armonicii a treia este mult mai mică decît cea a cîmpului electric de frecvența fundamentalei. Rezolvarea ecuațiilor (12.83) — (12.84) se poate face prin metoda iterației. Pentru un cîmp electric de forma

$$\mathbf{E} = \frac{\mathbf{E}_{(0)\omega}}{2} e^{i\omega t} + \text{c.c.} \tag{12.85}$$

introdus în ecuația polarizării (12.83) se obține polarizarea mediului cu o variație armonică în timp de frecvență ω

$$\mathbf{P}_{(0)\omega} = \frac{-\frac{2\Omega}{\hbar} L \frac{|\mathbf{d}_{12}|^2}{3} N\mathbf{E}_{(0)\omega}}{\Omega^2 - \omega^2}. \tag{12.86}$$

Ținînd seama de condițiile

$$N = N_0 = ct \tag{12.87}$$

$$\Omega \simeq 3\omega \tag{12.88}$$

rezultă

$$\mathbf{P}_{(0)\omega} = \frac{L|\mathbf{d}_{12}|^2 N_0 \mathbf{E}_\omega}{4\hbar\omega}. \tag{12.89}$$

Cunoscînd expresiile polarizării și cîmpului electric din ecuația pentru populații se poate determina modul de variație în timp a diferenței de populație N. Din termenul drept al ecuației (12.84) rezultă că variațiile în timp ale diferenței de populație au frecvența 2ω. Căutînd pentru diferența de populație o soluție de forma

$$N = N_0 + \frac{N_\omega}{2} \exp(i2\omega t) + \text{c.c.} \tag{12.90}$$

se obține

$$i\frac{2\omega N_{2\omega}}{2} \exp(i2\omega t) + \frac{N_0 N_0^e}{T_1}\left(\frac{N_{2\omega}^e}{2} - \frac{N_{2\omega}}{2}\right)\frac{1}{T_1} \exp(i2\omega t) =$$

$$= \frac{2}{\hbar\Omega} i\omega \mathbf{P}_{(0)\omega} \exp(i\omega t) \cdot \frac{\mathbf{E}_{(0)\omega}}{2} \exp(i\omega t) \tag{12.91}$$

$$N_2 = \frac{P_{(0)\omega} \cdot E_{(0)\omega}}{6\hbar\omega}. \tag{12.92}$$

Diferența de populație care variază sinusoidal cu frecvența 2ω dă naștere unei polarizări care variază în timp cu frecvența 3ω.

Admițînd pentru polarizare soluția

$$\mathbf{P} = \frac{P_{(0)\omega}}{2} \exp(i\omega t) + \frac{\mathbf{P}_{(0)3\omega}}{2} \exp(i3\omega t) + \text{c.c.} \tag{12.93}$$

din ecuaţia (12.93) se obţine expresia

$$P_{(0)3\omega} = \frac{i T_2 |\mathbf{d}_{12}|^2 N_{(0)2\omega} E_{(0)\omega}}{6h}. \tag{12.94}$$

Ţinînd seama de expresia diferenţei de populaţie $N_{2\omega}$ relaţia (12.94) devine

$$\mathbf{P}_{(0)3\omega} = -\frac{|\mathbf{d}_{12}|^4 L^2 T_2 N_0}{144 \, h^3 \omega^2} (\mathbf{E}_{(0)\omega})^3. \tag{12.95}$$

Polarizarea care variază în timp cu frecvenţa 3ω determină apariţia unui cîmp armonic de această frecvenţă care este mult mai slab decît cel iniţial cu frecvenţa ω, de aceea poate fi neglijat într-o primă aproximaţie.

Expresia amplitudinii cîmpului electric de frecvenţa armonicii a treia se obţine folosind $\mathbf{P}_{(0)3\omega}$ şi $\mathbf{E}_{(0)3\omega}$ sub forma unor unde progresive

$$\mathbf{P}_{3\omega} = \frac{\mathbf{P}_{(0)3\omega}}{2} \exp(i3\omega t) \exp(-i3k_1 z) + \text{c.c.} \tag{12.96}$$

$$\mathbf{E}_{3\omega} = \frac{\mathbf{E}_{(0)3\omega}(z)}{2} \exp(i3\omega t) \exp(-i3k_1 z) + \text{c.c.} \tag{12.97}$$

care verifică ecuaţia de cîmp electromagnetic

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \frac{n\gamma}{c}\frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{n^2}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}. \tag{12.98}$$

În relaţiile (12.96)—(12.98) $k_1 = \frac{n_1 \omega}{c}$ reprezintă constanta de propagare prin mediul în care se produce generarea armonicii a treia, pentru radiaţia de frecvenţă ω, iar n_1 indicele de refracţie corespunzător acestei frecvenţe. Ecuaţiile (12.96)—(12.97) descriu cazul unidimensional în care propagarea se face după axa z a mediului. Neglijînd pierderile ($\gamma \simeq 0$), cu condiţia la limită $E_{(0)3\omega}(0) = 0$ din ecuaţia (12.98) rezultă amplitudinea cîmpului electric al armonicii a treia

$$E_{(0)3\omega} = \frac{\mu_0 (3\omega)^2 P_{(0)3\omega}}{(3k_1)^2 - \left(\frac{3\omega n_3}{c}\right)^2} \left\{ 1 - \exp\left[\frac{i\left[(3k_1)^2 - \left(\frac{3\omega n_3}{c}\right)^2\right]}{6k} z \right] \right\}. \tag{12.99}$$

Cu ajutorul expresiei lui $E_{(0)3\omega}$ se poate deduce densitatea de putere a armonicii a treia funcţie de distanţa parcursă în mediu şi mărimea cîmpului la intrare

$$I_{3\omega} = \frac{n_3 c \varepsilon_0 |E_{(0)3\omega}|^2}{2} = I_0 \frac{\sin^2 \alpha z}{\alpha^2} \tag{12.100}$$

unde

$$\alpha = \frac{(3k_1)^2 - \left(\frac{3\omega n_3}{c}\right)^2}{12k_1} \tag{12.101}$$

reprezintă dezacordul indicilor de refracție, iar

$$I_0 = \frac{n_3\mu_0 |\mathbf{d}_{12}|^2 L^4 T_2^2 N_0^2 |E_{(0)\omega}|^6}{9 \cdot 2^{11} c k_1^2 h^6} \tag{12.102}$$

exprimă dependența armonicii a treia de cubul puterii fundamentalei.

Din analiza relațiilor (12.100)—(12.102) se pot deduce o serie de concluzii privind condițiile teoretice și experimentale de obținere a armonicii a treia. Dependența puterii armonicii de parcursul prin mediul neliniar este funcție de dezacordul indicilor de refracție α. Pentru $\alpha \to 0$

$$I_{3\omega} = \lim_{\alpha \to 0} I_0 z^2 \left(\frac{\sin \alpha z}{\alpha z}\right)^2 = I_0 z^2. \tag{12.103}$$

Rezultă o creștere parabolică a densității de putere cu parcursul prin mediu (fig. 12.7).

Pentru $\alpha \neq 0$, $I_{3\omega}$ are o variație armonică în jurul unei valori medii trecînd prin maxime egale cu I_0/α^2 și minime egale cu zero (fig. 12.8). Se obțin condiții optime numai pentru anumite parcursuri date de relația $\alpha z = \pi/2$. Mărimea $l_c = \pi/2\alpha$ se numește „lungimea de coerență".

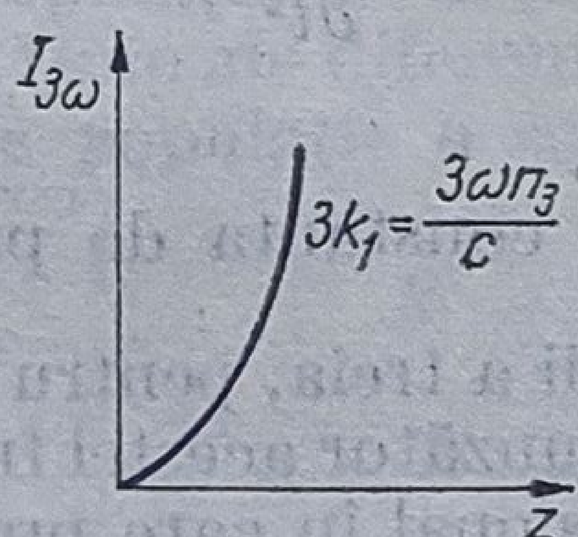


Fig. 12.7.

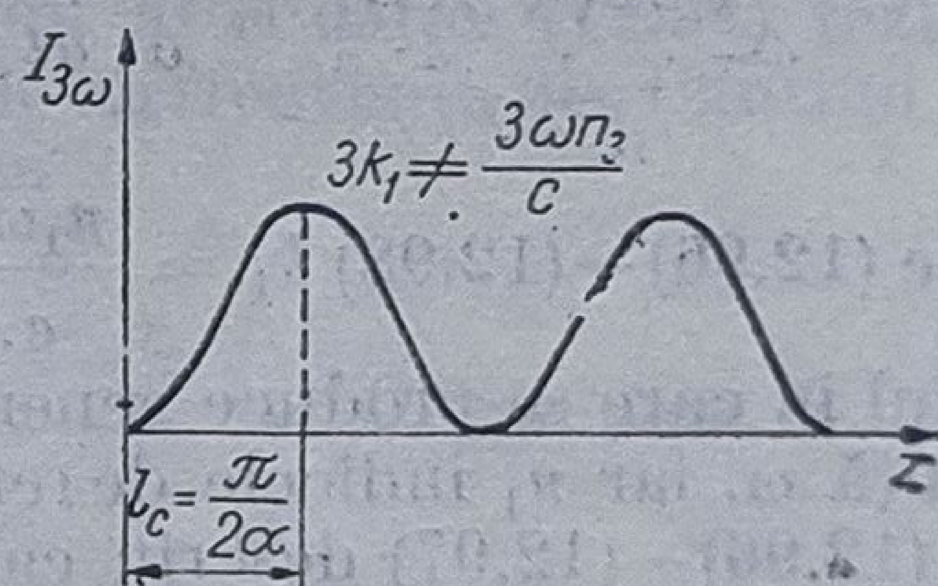


Fig. 12.8.

Condiția $\alpha \to 0$ conduce la egalitatea

$$3k_1 = \frac{3n_1\omega}{c} \tag{12.104}$$

unde

$$k_1 = \frac{n_1\omega}{c} \tag{12.105}$$

Din relațiile (12.104) și (12.105) rezultă condiția necesară pentru obținerea adaptării indicilor de refracție

$$n_{1\omega} = n_{3\omega} \tag{12.106}$$

pentru cazul armonicii a treia.

12.2.2. Generarea armonicii a treia în gaze prin metoda focalizării fascicului laser

Eficiența conversiei radiației fundamentale într-o radiație de frecvența armonicii a treia poate fi mult îmbunătățită dacă pentru excitarea mediului neliniar se folosesc fascicule laser focalizate.

Pentru a calcula polarizarea neliniară de ordinul trei folosim același procedeu ca și în cazul generării armonicii a doua (cap. 12.1). Considerînd un cîmp electric incident a cărui mod de distribuție gaussian corespunde celui mai coborît ordin, TEM_{00}

$$\mathbf{E}_1(r, t) = \frac{1}{2}\{\mathbf{E}_1(\mathbf{r})\,e^{-i\omega_1 t} + \mathbf{E}_1^*(\mathbf{r})\,e^{+i\omega_1 t}\} \tag{12.107}$$

unde

$$\mathbf{E}_1(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0\,e^{ik_1 z}(1 + i\xi)^{-1}\exp[-k(x^2 + y^2)/b(1 + i\xi)]. \tag{12.108}$$

Polarizarea neliniară a armonicii de ordinul q se poate calcula cu ajutorul relației

$$\mathbf{P}^{(q)}(r) = 2^{(1-q)}\,\chi^{(q)}(-\omega;\ \omega_1,\ \omega_1 \ldots)[\mathbf{E}_1(\mathbf{r})]^2 =$$

$$= 2^{(1-q)}\chi^{(q)}\mathbf{E}_0^q\ \exp(ik'z)(1 + i\xi)^{-q}\cdot\exp\left(-\frac{k'(x^2 + y^2)}{b(1 + i\xi)}\right). \tag{12.109}$$

În relațiile (12.107)—(12.109) $\chi^{(q)}(-\omega;\ \omega_1, \omega_1, \ldots)$ reprezintă susceptibilitatea neliniară de ordinul q, $k' = qk_1$ și $\omega = q\omega_1$. Transformata Fourier a polarizării neliniare de ordinul q

$$P_{\mathbf{K}}^{(q)} = (2\pi)^{-3}\int_{-\infty}^{+\infty} P^{(q)}(\mathbf{r}'')\exp(i\mathbf{K}\mathbf{r}'')\,d\mathbf{r}'' \tag{12.110}$$

generează un cîmp electric cu frecvența armonicii de ordinul q[168] de forma

$$E_{\mathbf{K}}(\mathbf{r}) = -\,[2\pi k_0^2 P_{\mathbf{K}}^{(q)} z/k]\,g(U_{\mathbf{K}})\exp(i\mathbf{K}\mathbf{r}) \tag{12.111}$$

unde

$$U_{\mathbf{K}} = i\{K_z - k' + (K_x^2 + K_y^2)/2k' + \Delta k\} \tag{12.112}$$

$$g(x) = (1 - e^{-x})/x = \int_0^1 e^{-xp}\,dp \tag{12.113}$$

iar $\mathbf{k}$ și $\mathbf{k}_0$ sînt vectorii de undă ai armonicii în mediul neliniar respectiv în vid.

Pentru deducerea relaţiei (12.111) s-a considerat că întinderea unghiulară a fasciculului şi dezacordul

$$\Delta k = k' - k \tag{12.114}$$

sînt mici ($|\Delta k| \ll k', k$). Efectuînd transformata Fourier inversă a cîmpului $E_K(\mathbf{r})$ al cărui vector de undă este $\mathbf{K}$ se poate obţine expresia cîmpului electric total al armonicii generate sub forma

$$E(r) = \left[\mathrm{i}2^{(1-q)} \pi k_0^2 b \chi^{(q)} E_0^q / k \right] \exp(\mathrm{i}k'z)(1 + \mathrm{i}\xi)^{-1} \times$$

$$\times \exp\left(-\frac{k'(x^2 + y^2)}{b(1 + \mathrm{i}\xi)}\right) I(q, \Delta k, \xi, \zeta) \tag{12.115}$$

unde

$$I(q, \Delta k, \xi, \zeta) = \int_{-\zeta}^{\xi} \mathrm{d}\xi' \frac{\exp \frac{1}{2} \mathrm{i}b\Delta k(\xi' - \xi)}{(1 + \mathrm{i}\xi')^{q-1}}. \tag{12.116}$$

Integrala $I(q, \Delta k, \xi, \zeta)$ poate fi evaluată analitic pentru un mediu infinit ($\xi, \zeta \to \infty$) obţinîndu-se următoarele valori

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\mathrm{d}\xi' \exp\left(\frac{1}{2} \mathrm{i}b\Delta k \xi'\right)}{(1 + \mathrm{i}\xi')^{q-1}} = 0 \text{ pentru } \Delta k \leqslant 0: \tag{12.117}$$

$$= \frac{2\pi}{(q-2)!} \left(\frac{b\Delta k}{2}\right)^{q-2} \exp\left(-\frac{b\Delta k}{2}\right) \text{ pentru } \Delta k > 0. \tag{12.118}$$

În cazul armonicii a treia valoarea integralei I este

$$I(3, \Delta k, \infty, \infty) = 0 \qquad \text{pentru } \Delta k \leqslant 0 \tag{12.119}$$

$$I(3, \Delta k, \infty, \infty) = -\pi b \Delta k \exp\left(-\frac{1}{2} b\Delta k\right) \qquad \text{pentru } \Delta k > 0. \tag{12.120}$$

O analiză teoretică a interacţiilor neliniare de ordinul trei care au loc în fascicule laser focalizate este prezentată în lucrarea [181] pentru procese de tipul $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 \to \omega_4$; $\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 \to \omega_4$ şi $\omega_1 - \omega_2 - \omega_3 \to \omega_4$.

Cu ajutorul cîmpului electric se poate calcula puterea armonicii a treia [112]

$$P^{(3)} = \frac{3\eta^4 \pi^2 c^2}{\lambda^4} N^2 [\chi^{(3)}(3\omega)]^2 |I(\Delta k, \xi, \zeta)|^2 \cdot [P^{(1)}]^3 \tag{12.121}$$

unde N reprezintă numărul de atomi/cm³, $\eta = \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \sim 377\ \Omega$, iar n_3 și n_1 sînt indicii de refracție corespunzători armonicii a treia respectiv fundamentalei. În relațiile de mai sus s-au folosit următoarele notații

$$\xi = 2(L - f)/b \tag{12.122}$$

$$\zeta = 2f/b \tag{12.123}$$

$$b = \frac{2\pi w_0^2}{\lambda} \tag{12.124}$$

unde L este lungimea celulei de gaz, f distanța, măsurată de la fereastra de intrare a celulei cu gaz la care fasciculul a fost focalizat, iar b parametrul confocal determinat de lărgimea fasciculului w_0.

Eficiența conversiei definită prin raportul dintre puterea armonicii a treia și cea a fundamentalei este dată de relația

$$\frac{P^{(3)}}{P^{(1)}} = \frac{8{,}215\cdot 10^{-2}}{\lambda^4} N^2[\chi^{(3)}(3\omega)]^2\,|I|^2[P^{(1)}]^2. \tag{12.125}$$

Pentru a se evalua eficiența conversiei din relația (12.125), puterea se exprimă în wați, densitatea de atomi N în atomi/cm³, susceptibilitatea neliniară $\chi^{(3)}(3\omega)$ în e.s.u., iar lungimea de undă a radiației incidente în cm.

Integrala I joacă un rol determinant în procesele de focalizare și dispersie. Astfel, dacă $b \gg L$, se obține aproximația undei plane, iar eficiența conversiei devine

$$\frac{P^{(3)}}{P^{(1)}} = \frac{5{,}134\cdot 10^{-3}}{\lambda^2} N^2L^2[\chi^{(3)}(3\omega)]^2 \left(\frac{\sin\frac{\Delta k L}{2}}{\frac{\Delta k L}{2}}\right)^2 \left[\frac{P^{(1)}}{A}\right]^2 \tag{12.126}$$

unde A reprezintă aria efectivă a fasciculului gaussian.

Pe de altă parte, în cazul unei focalizări puternice în centrul celulei $b \ll L$, $\xi = \zeta$, iar

$$\frac{P^{(3)}}{P^{(1)}} = \begin{cases} \frac{8{,}215\cdot 10^{-2}}{\lambda^4} N^2[\chi^{(3)}(3\omega)]^2\left[\pi b \Delta k \exp\left(\frac{1}{2} b\,\Delta k\right)\right]^2\left[\frac{P^{(1)}}{A}\right]^2, & \text{pentru } \Delta k < 0 \quad (12.127)\\ 0, & \text{pentru } \Delta k \geq 0. \quad (12.128)\end{cases}$$

Eficiența maximă a conversiei se obține în aproximația undei plane pentru $\Delta k = 0$, iar în cazul focalizării puternice dacă $b\Delta k = -4$ sau $L\Delta k = -3{,}5$ dacă fasciculul laser este focalizat în centrul mediului neliniar ($b = L$; $\xi = \zeta$).

Condiția $\Delta k = 0$, necesară maximizării eficienței conversiei poate fi îndeplinită prin mixarea a două gaze care nu reacționează între ele unul cu dispersia pozitivă, cum ar fi, de exemplu, gazele nobile și altul cu dispersia negativă în domeniul spectral corespunzător armonicii, care constă din vaporii metalelor alcaline. Alegerea vaporilor metalelor alcaline ca medii neliniare în vederea îmbunătățirii conversiei este determinată de valoarea mai ridicată cu cîteva ordine de mărime a susceptibilității

23 — c. 765

neliniare de ordinul trei în raport cu cea corespunzătoare altor medii gazoase, de exemplu, gazele nobile.

În absența gazelor nobile (numite și gaze tampon) generarea armonicii a treia are loc numai pe distanțe foarte scurte pe care fundamentala și armonica interacționează constructiv, așa-numita „lungime de coerență" $L_c = \frac{\pi}{\Delta k}$, ale cărei valori pentru vaporii metalelor alcaline sînt prezentate în tabelul 12.2. Prin acordarea indicilor, lungimea de interacție devine egală cu lungimea celulei și conduce la o creștere a puterii la ieșire cu un factor $\left(\frac{\pi L}{2L_c}\right)^2$.

Presiunile parțiale ale gazelor care compun mixtura au fost astfel alese încît indicii de refracție ai mediului neliniar pentru fundamentală respectiv armonica a treia să fie egali. În fig. 12.9 se prezintă dependența de lungimea de undă a indicelui de refracție a unei mixturi formate din rubidiu și xenon.

Fig. 12.9

Indicii de refracție ai metalelor alcaline se calculează cu ajutorul relației lui Sellmeier

$$n = 1 + \frac{Nr_e}{2\pi} \sum_i \frac{f_i}{(1/\lambda_i)^2 - (1/\lambda)^2} \qquad (12.129)$$

unde $r_e = 2{,}818 \cdot 10^{-13}$ cm, f_i reprezintă tăria oscilatorului tranziției i, iar λ_i lungimea de undă a tranziției i exprimată în centrimetri. Valorile tăriilor oscilatorilor și lungimile de undă corespunzătoare liniilor rezonante care dau contribuție maximă la calculul indicelui de refracție sînt prezentate în tabelul 12.1.

Tabelul 12.1

Element	$\lambda_{(\mu m)}^{\text{rezonantă}}$	f
Li	0,6708	0,744
	0,3234	0,00428
	0,2742	0,00396
Na	0,5892	0,982
	0,3303	0,0142
	0,2853	0,0022
K	0,7676	1,04
	0,4045	0,0154
	0,3447	0,00277
Rb	0,7948	0,395
	0,7800	0,805
	0,4216	0,00532
	0,4202	0,01068
	0,3592	0,000979
	0,3587	0,00196
Cs	0,8944	0,394
	0,8521	0,814
	0,4593	0,00684
	0,4555	0,0174
	0,3890	0,000317
	0,3876	0,00349

În condiţii normale de presiune şi temperatură, indicele de refracţie al xenonului se poate calcula cu formula lui Koch

$$n_{Xe} \simeq 1 + \left(\frac{393235}{46,3012 - 10^{-8}/\lambda^2} + \frac{393235}{59,5779 - 10^{-8}/\lambda^2} + \right.$$

$$\left. + \frac{7366100}{139,8310 - 10^{-8}/\lambda^2}\right) \cdot 10^{-8} \tag{12.130}$$

unde lungimea de undă a radiaţiei incidente este exprimată în centimetri. Ţinînd seama că pentru îndeplinirea condiţiei $\Delta k = 0$ indicii de refracţie ai mixturii pentru fundamentală şi armonică trebuie să fie egali, se poate calcula raportul dintre numărul atomilor de Xe şi de vapori metalici ($N_{Xe} : N$) necesar generării armonicii. În tabelul 12.2 sînt date cîteva valori ale raportului $N_{Xe} : N$ pentru vaporii metalelor alcaline corespunzătoare acordării indicilor în cazul generării armonicii a treia cu o radiaţie laser fundamentală avînd $\lambda = 1,06$ µm respectiv $\lambda = 0,6943$ µm precum şi ale susceptibilităţilor neliniare de ordinul 3 corespunzătoare.

Tabelul 12.2

Element	$\chi^{(3)}(3\omega)$ (e.s.u.)	$L_c N$	$N_{Xe} : N$	B/N
1,06 µm — 0,3547 µm				
Li	$1,25 \cdot 10^{-34}$	$5,79 \cdot 10^{16}$	154	$1,80 \cdot 10^{-32}$
Na	$-3,93 \cdot 10^{-34}$	$5,86 \cdot 10^{16}$	152	$2,77 \cdot 10^{-33}$
K	$2,61 \cdot 10^{-34}$	$2,73 \cdot 10^{16}$	326	$1,81 \cdot 10^{-32}$
Rb	$6,15 \cdot 10^{-33}$	$2,15 \cdot 10^{16}$	414	$3,30 \cdot 10^{-32}$
Cs	$-1,17 \cdot 10^{-32}$	$1,33 \cdot 10^{16}$	658	$5,36 \cdot 10^{-32}$
0,6943 µm — 0,2314 µm				
Li	$3 \cdot 10^{-34}$	$5,03 \cdot 10^{16}$	400	$1,93 \cdot 10^{-30}$
Na	$3,16 \cdot 10^{-34}$	$2,01 \cdot 10^{16}$	100	$3,69 \cdot 10^{-32}$
K	$6,17 \cdot 10^{-35}$	$9,6 \cdot 10^{15}$	—	—
Rb	$8,25 \cdot 10^{-34}$	$9,94 \cdot 10^{16}$	—	—
Cs	$3,25 \cdot 10^{-33}$	$1,65 \cdot 10^{16}$	—	—

Numărul de atomi/cm³ pentru vaporii metalici se poate calcula cu ajutorul presiunii P (mm Hg), din relaţia

$$N = 9,66084 \cdot 10^{18}\,\frac{P(\text{mmHg})}{T(\text{K})}\ \text{atomi/cm}^3. \tag{12.131}$$

Pentru presiuni nu prea mari (~1 mmHg), presiunea vaporilor metalici este

$$P(\text{mmHg}) \simeq \exp[-(a/T) + d] \tag{12.132}$$

unde constantele a și d sînt date de tabelul 12.3.

Tabelul 12.3

Element	Li	Na	K	Rb	Cs
a	19571,4	12423,3	10210,4	9140,07	8827,38
d	19,130	17,3914	16,539	16,0628	16,0007

Pentru ca fundamentala și armonica a treia să interfere constructiv trebuie ca din punct de vedere al intervalului de timp să se suprapună cel puțin 50%. Valoarea minimă permisă a duratei pulsului Δt_{min} care satisface condiția de mai înainte este determinată de diferența vitezelor de grup Δv_g a fundamentalei și respectiv armonicii este dată de expresia

$$\Delta t_{min} = \frac{n_1 n_3 L}{c^2}\left[\frac{\partial \omega_3}{\partial k_3} - \frac{\partial \omega_1}{\partial k_1}\right] = \frac{n_1 n_3 \Delta v_g}{c^2} L = B \cdot L. \qquad (12.133)$$

Constanta B este proporțională cu numărul de atomi, iar cea normată, B/N, este dată pentru vaporii metalici în tabelul 12.2. Dacă se folosește, de exemplu, rubidiul ca mediu neliniar, iar lungimea celulei este $L = 50$ cm, durata pulsului unei radiații cu $\lambda = 1{,}06$ µm trebuie să fie de 0,17 ps.

În vederea realizării acordului indicilor temperatura trebuie să fie menținută riguros constantă. Admițînd o variație maximă a dezacordului $\delta(\Delta k) = \frac{\pi}{L}$, aceasta conduce la o variație maximă pentru temperatură

$$\Delta T = \frac{L_c}{L} T\left[\frac{a}{T} - 1\right]^{-1}. \qquad (12.134)$$

În cazul sodiului, cu $N = 10^{17}$ atomi/cm³ se obține valoarea $\Delta(T) = 33{,}4/L$ (K), unde L este exprimat în centimetri.

Dacă se utilizează pentru generarea armonicii a treia fascicule focalizate puternic pe celula cu gaz, pentru îndeplinirea condiției $b\Delta k = -4$, care permite obținerea unor conversii maxime, trebuie ca mediul să aibă dispersie negativă. Această condiție este realizată dacă numărul de atomi/cm³ are valoarea

$$N_f = \frac{4\, L_c N}{b\pi}. \qquad (12.135)$$

Eficiența conversiei în acest caz este

$$\frac{P^{(3)}}{P^{(1)}} = K\left(\frac{P}{A}\right)^2. \qquad (12.136)$$

Valorile numărului de atomi N_f respectiv constantei K pentru vaporii metalici, în cazul generării armonicii a treia cu ajutorul unei radiații

Tabelul 12.4

Element	N_f (atomi/cm³)	K
1,064 μm — 0,3547 μm		
Li	$7{,}37 \cdot 10^{16}/b$	$1{,}11 \cdot 10^{-28}$
Na	$7{,}46 \cdot 10^{16}/b$	$1{,}13 \cdot 10^{-28}$
K	$3{,}47 \cdot 10^{16}/b$	$1{,}08 \cdot 10^{-28}$
Rb	$2{,}75 \cdot 10^{16}/b$	$3{,}75 \cdot 10^{-28}$
Cs	$1{,}72 \cdot 10^{16}/b$	$5{,}31 \cdot 10^{-28}$
,6943 μm — 0,2314 μm		
Li	$6{,}40 \cdot 10^{15}/b$	$1{,}14 \cdot 10^{-27}$
Na	$2{,}56 \cdot 10^{15}/b$	$2{,}02 \cdot 10^{-27}$

cu $\lambda = 1{,}06$ μm și $\lambda = 0{,}6943$ μm sînt prezentate în tabelul 12.4.

La puteri mari și foarte mari ale radiației excitatoare generarea armonicii a treia este limitată de mai multe procese, cum ar fi : absorbția fundamentalei și armonicii, saturația (legată de autofocalizarea fasciculului și de neîndeplinirea condiției de adaptare a indicilor), absorbția multifotonică, ionizarea și altele. O analiză detaliată a proceselor care limitează eficiența conversiei, precum și posilitățile de optimizare a acesteia, este prezentată în lucrarea [112]. Astfel, folosindu-se o mixtură de Rb—Xe excitată cu o radiație avînd următoarele caracteristici : $\lambda = 1{,}06$ μm, puterea $P^{(1)} = 10$ GW/cm² și durata pulsului 10 ps s-a obținut o conversie de aproximativ 10% [172], care este comparabilă cu cea corespunzătoare generării armonicii a doua în cristale. Eficiența conversiei este limitată, în acest caz, mai ales de procesele de ionizare și de valoarea mică a susceptibilității neliniare de ordinul trei.

12.2.3. Generarea armonicii a treia prin absorbția rezonantă a doi fotoni

Pentru a se obține eficiențe de conversie ridicate, cîmpul electric incident trebuie să inducă în mediul cu care interacționează o polarizare neliniară cît mai mare. Această polarizare trebuie să fie acordată cu cîmpul electric incident, astfel încît energia lui să se transforme în energia cîmpului de frecvența armonicii.

O altă posibilitate de obținere a eficiențelor ridicate este legată de absorbția rezonantă a doi fotoni care determină creșterea susceptibilității neliniare de ordinul trei, la rezonanță, cu cîteva ordine de mărime. Rezonanțele care implică unul sau trei fotoni nu prezintă importanță practică pentru că ele sînt asociate cu absorbția liniară puternică a radiației fundamentale și a celei generate. În plus, tranzițiile care implică doi fotoni se saturează la intensități mult mai mari decît cele cu un foton pentru că au o secțiune eficace mai mică. De asemenea, mai pot fi folosite rezonanțele care implică nivelele de autoionizare care în comparație cu cele ale nivelelor legate sînt largi și mai puțin intense [102]. Duratele pulsurilor radiației excitatoare trebuie să fie cît mai scurte, de ordinul picosecundelor, în vederea creșterii limitei impuse intensității radiației incidente de efectele de saturație și de ionizare. Utilizîndu-se absorbția rezonantă a doi fotoni și acordarea indicilor într-o mixtură de Na și Xe ale căror presiuni parțiale sînt în raportul Na : Xe = 1 : 53 s-au obținut eficiențe de conversie de aproximativ 8% [102]. Printr-o alegere favorabilă a parametrilor care limitează conversia, eficiențele pot fi mult îmbunătățite.

Generarea armonicii a treia pe baza absorbției rezonante a doi fotoni[3] poate fi descrisă cu ajutorul ecuațiilor cuplate de amplitudine în care polarizarea neliniară este calculată folosind formalismul matricei densitate [170].

Pe baza acestui model pot fi puse în evidență și unele procese care limitează eficiența conversiei, cum ar fi : saturația, ionizarea, deplasarea frecvențelor datorită efectului Stark, variația dezacordului indicilor de refracție din cauza redistribuirii populațiilor, absorbția a doi fotoni.

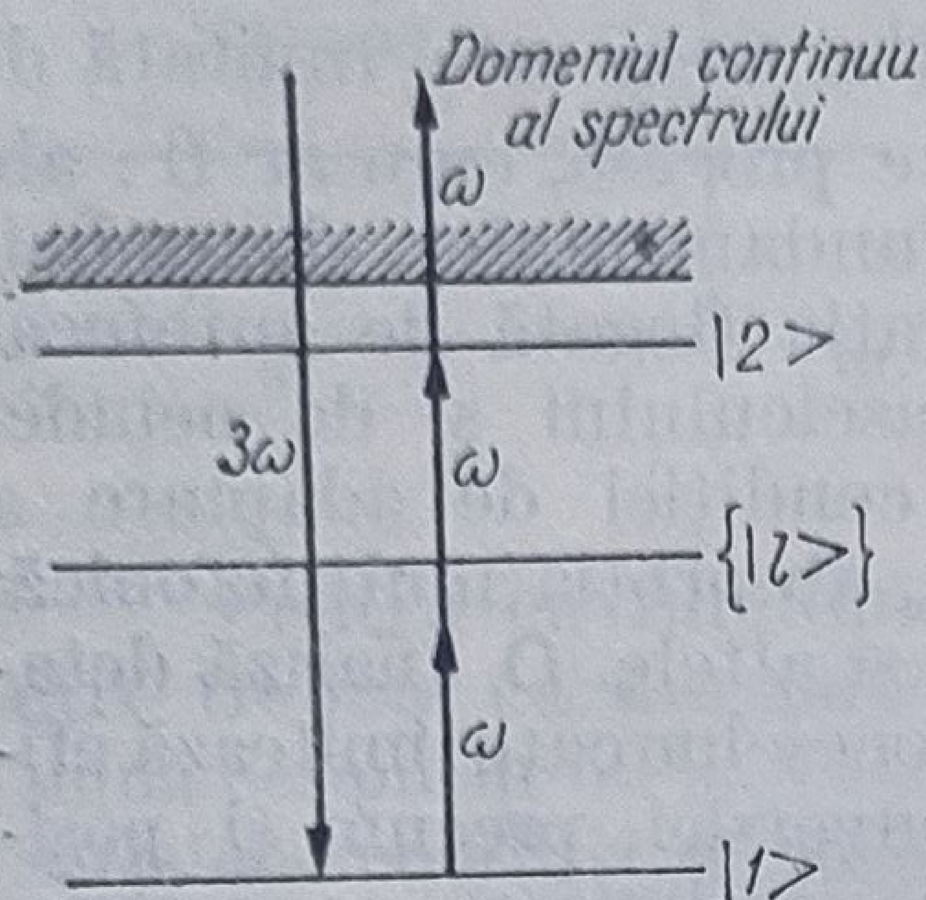


Fig. 12.10

Considerînd că generarea armonicii a treia are loc pe baza absorbției rezonante a doi fotoni între nivelele $|1\rangle$ și $|2\rangle$ conform schemei prezentată în fig. 12.10, unde $\{|l\rangle\}$ reprezintă setul de nivele legate sau libere care permit tranziții de dipol în vederea obținerii rezonanței cu doi fotoni, polarizarea neliniară de diferite ordine se calculează cu ajutorul formulei

$$P(z,\ t) = \mathrm{Urm}\,[\rho(z,\ t)d] = \\ = \sum_l (\rho_{1l}d_{l1} + d_{1l}\rho_{l1} + \rho_{2l}d_{l2} + d_{2l}\rho_{l2}). \tag{12.137}$$

Calculul elementelor de matrice ale operatorului densitate se face utilizînd ecuația de mișcare

$$i\hbar\frac{\partial \rho}{\partial t} = [H_0 + H_i(t),\ \rho] \tag{12.138}$$

unde

$$H_i(t) = -dE_i(t) \tag{12.139}$$

reprezintă hamiltonianul de interacție în aproximația de dipol. Neglijînd cîmpul de frecvența armonicii a treia în expresia hamiltonianului de interacție și considerîndu-l pe cel incident de forma

$$E_i(t) = E(t)e^{i\omega t} + E^*(t)e^{-i\omega t} \tag{12.140}$$

$E(t)$ fiind amplitudinea complexă care variază lent în timp, se obțin următoarele ecuații pentru elementele de matrice ale operatorului densitate

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{T_1}\right)\rho_{22} = -i\hbar^{-1}E(t)\sum_l(\rho_{2l}d_{l2} - d_{2l}\rho_{l2}) \tag{12.141}$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{12} + \frac{1}{T_2}\right)\rho_{12} = -i\hbar^{-1}E(t)\sum_l(\rho_{1l}d_{l2} - d_{1l}\rho_{l2}) \tag{12.142}$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{1l}\right)\rho_{1l} = -i\hbar^{-1}E(t)\sum_{k=1,2}(\rho_{1k}d_{kl} - d_{1k}\rho_{kl}) \tag{12.143}$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{2l}\right)\rho_{2l} = -i\hbar^{-1}E(t)\sum_{k=1,2}(\rho_{2k}d_{kl} - d_{2k}\rho_{kl}). \tag{12.144}$$

În aceste relații T_1 reprezintă timpul de viață al stării excitate $|2\rangle$, T_2 este timpul de relaxare transversal care caracterizează distrugerea coerenței în procesul de excitare cu doi fotoni datorită pierderilor și ciocnirilor elastice, iar $\omega_{1l} = \omega_1 - \omega_l$. Pentru rezolvarea sistemului de ecuații

(12.141)–(12.144) se admite că fiecare element de matrice poate fi dezvoltat în serie de armonici ale frecvenței cîmpului incident astfel

$$\rho_{ij}(t) = \sigma_{ij}(t) + \sum_{n>0} [\sigma_{ij}^{(n)}(t)e^{in\omega t} + \sigma_{ji}^{(n)*}(t)e^{-in\omega t}] \qquad (12.145)$$

unde σ_{ij}, $\sigma_{ij}^{(n)}$ și $\sigma_{ji}^{(n)*}$ reprezintă amplitudini complexe care variază lent în timp. Pentru calculul elementelor diagonale ρ_{11} și ρ_{22} se ia în considerare numai primul termen al dezvoltării (12.145), adică σ_{11} și σ_{22}, iar pentru calculul elementelor nediagonale ρ_{12}, din cauza regulilor de selecție, $d_{12}=0$, (determinată de paritate) se consideră o expresie de forma

$$\rho_{12}(t) = \sigma_{12}^{(2)} e^{i2\omega t} + \sigma_{21}^{(2)*} e^{-i2\omega t}. \qquad (12.146)$$

Elementele de matrice nerezonante ρ_{1l}, ρ_{2l} care cuplează nivelele $|1\rangle$ și $|2\rangle$ cu alte nivele, conțin numai armonici impare, de exemplu

$$\rho_{1l}(t) = \sigma_{1l}^{(1)} e^{i\omega t} + \sigma_{l1}^{(1)*} e^{-i\omega t} + \sigma_{1l}^{(3)} e^{i3\omega t} + \sigma_{l1}^{(3)*} e^{-i3\omega t} + \ldots \qquad (12.147)$$

În urma înlocuirii expresiilor elementelor de matrice în ecuațiile (12.143)–(12.144) și neglijării derivatelor în raport cu timpul ale amplitudinilor complexe se obține

$$\sigma_{1l}^{(1)} = -\frac{E\sigma_{11} d_{1l} + E^* \sigma_{12}^{(2)} d_{2l}}{\hbar(\omega + \omega_{1l})} \qquad (12.148)$$

$$\sigma_{l1}^{(1)*} = -\frac{E^* \sigma_{12} d_{1l} + E\sigma_{21}^{(2)*} d_{2l}}{\hbar(-\omega + \omega_{1l})} \qquad (12.149)$$

$$\sigma_{1l}^{(3)} = -\frac{E\sigma_{12}^{(2)} d_{2l}}{\hbar(3\omega + \omega_{1l})} \qquad (12.150)$$

$$\sigma_{l1}^{(3)*} = -\frac{E^* \sigma_{21}^{(2)*} d_{2l}}{\hbar(-3\omega + \omega_{1l})}. \qquad (12.151)$$

Expresiile amplitudinilor complexe $\sigma_{l2}^{(1)*}$, $\sigma_{2l}^{(1)}$, $\sigma_{2l}^{(3)}$ și $\sigma_{l2}^{(3)*}$ se pot obține din relațiile (12.148)–(12.151) prin schimbarea indicelui 1 cu 2. Ținînd seama de expresiile elementelor de matrice ale operatorului densitate și de cele ale amplitudinilor complexe, ecuațiile (12.141)–(12.142) devin

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + i(2\omega - \omega_{21} - \delta\omega_{21}) + \left(\frac{1}{T_2} + \frac{\gamma}{2}\right)\right] \sigma_{12}^{(2)} = -i\hbar^{-2}(\sigma_{22} - \sigma_{11})\upsilon_{12}E^2 \qquad (12.152)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{T_1}\right) \sigma_{22} = -2\hbar^{-2} \,\mathrm{Im}\, [\upsilon_{12}^* \sigma_{12}^{(2)} (E^*)^2] - \gamma\sigma_{22}. \qquad (12.153)$$

Pentru deducerea relațiilor (12.152)–(12.153) s-a neglijat amplitudinea antirezonantă $\sigma_{21}^{(2)}$ și s-a ținut seama de condiția $\omega_{21} = 2\omega$, care implică absorbția rezonantă a doi fotoni. În (12.152) s-a notat cu

$$\delta\omega_{21} = \hbar^{-1}(\alpha_1' - \alpha_2')\,|E|^2 \qquad (12.154)$$

deplasarea frecvențelor prin efect Stark, α_1 și α_2 reprezentînd polarizabilitățile nivelelor $|1\rangle$ și $|2\rangle$

$$\alpha_1 = \alpha_1' = \hbar^{-1} \sum_l \frac{2\,\omega_{l1}\,|\mathbf{d}_{1l}|^2}{\omega_{l1}^2 - \omega^2} \tag{12.155}$$

$$\alpha_2 = \alpha_2' - i\alpha_2'' = \hbar^{-1} \sum_l \left(\frac{|\mathbf{d}_{2l}|^2}{\omega_{l2} - \omega} + \frac{|\mathbf{d}_{2l}|^2}{\omega_{l2} + \omega} \right). \tag{12.156}$$

Polarizabilitatea α_2 a nivelului $|2\rangle$ este complexă din cauza cuplării nivelelor energetice legate, cu domeniul continuu al spectrului. Rata procesului de ionizare

$$\gamma = 2\hbar^{-1}\alpha_2''\,|E|^2 \tag{19.157}$$

rezultat în urma tranzițiilor de pe nivelul excitat $|2\rangle$ depinde de intensitatea radiației incidente și de polarizabilitatea nivelului $|2\rangle$. În expresia elementelor de matrice de ordinul doi, notate cu

$$\upsilon_{12} = \sum_l \frac{d_{1l}\, d_{l2}}{\omega_{l2} + \omega} \tag{12.158}$$

care apar în ecuațiile (12.152)–(12.153), operația de însumare trebuie făcută după toate stările intermediare legate, iar în cazul stărilor libere aceasta se transformă într-o integrală.

Sistemul de ecuații (12.152) – (12.153) completat cu ecuația corespunzătoare populației totale

$$\frac{\partial}{\partial t}(\sigma_{11} + \sigma_{22}) = -\gamma\sigma_{22} \tag{12.159}$$

poate fi folosit la descrierea oricărui proces care implică interacția a patru unde

$$\omega_1 + \omega_2 \pm \omega_3 = \omega_4 \tag{12.160}$$

pe baza absorbției rezonante a doi fotoni.

Pentru deducerea ecuațiilor de mai sus nu s-a luat în considerare producerea efectului laser în urma tranzițiilor de pe nivelul $|2\rangle$ pe alte stări intermediare mai coborîte pentru că secțiunea eficace a acestui proces este foarte mică și în plus mediul neliniar nu a fost introdus într-un rezonator optic. Ținînd seama de expresiile elementelor de matrice ale operatorului densitate, expresiile polarizărilor corespunzătoare fundamentalei și armonicii a treia devin

$$P_{\omega}^{NL}(z,t) = \sum_l (\sigma_{1l}^{(1)} d_{l1} + d_{1l}\sigma_{l1}^{(1)} + \sigma_{2l}^{(1)} d_{l2} + d_{2l}\sigma_{l2}^{(1)}) \times e^{i(\omega t - kz)} + \text{c.c.} \tag{12.161}$$

$$P_{3\omega}^{NL}(z,t) = \sum_l (\sigma_{1l}^{(3)} d_{l1} + d_{1l}\sigma_{l1}^{(3)} + \sigma_{2l}^{(3)} d_{l2} + d_{2l}\sigma_{l2}^{(3)}) \times e^{i(3\omega t - 3kz)} + \text{c.c.} \tag{12.162}$$

În general, datorită cuplajului puternic al atomului cu cîmpul care produce absorbția rezonantă a doi fotoni nu se poate defini o susceptibilitate neliniară de ordinul trei ca și în cazul generării nerezonante a armonicii a treia

$$P_{3\omega}^{NL}(z,t) = \chi_{3\omega}^{(3)} E^3(z,t)e^{i(3\omega t - 3kz)} + \text{c.c.} \tag{12.163}$$

Prin absorbția rezonantă a doi fotoni, termenul de ordinul doi $\sigma_{12}^{(2)}$ care caracterizează răspunsul atomului poate să producă saturația și astfel să limiteze eficiența conversiei. Dacă se neglijează amplitudinea antirezonantă $\sigma_{21}^{(2)}$ expresia polarizărilor corespunzătoare fundamentalei și armonicii se mai pot scrie sub forma

$$P_{\omega}(z,t) = [\chi'_{\omega}(z,t) + i\chi''_{\omega}(z,t)]E(z,t)e^{i(\omega t - kz)} + \text{c.c.} \tag{12.164}$$

$$P_{3\omega}(z,t) = [\chi'_{3\omega}(z,t) + i\chi''_{3}(z,t)]E_3(z,t)e^{i(3\omega t - k_3 z)} + \text{c.c.} \tag{12.165}$$

unde

$$\chi'_{\omega}(z,t) = \alpha'_1(\omega)\sigma_{11}(z,t) + \alpha'_2(\omega)\sigma_{22}(z,t) + 2h^{-1}\text{Re}[\upsilon_{12}\times \times e^{-i2\Phi(z,t)}\sigma_{12}^{(2)}(z,t)] \tag{12.166}$$

$$\chi''_{\omega}(z,t) = -\alpha''_2(\omega)\sigma_{22}(z,t) + 2h^{-1}\text{Im}[\upsilon_{12}^{*}e^{-i\Phi(z,t)}\sigma_{12}^{(2)}(z,t)] \tag{12.167}$$

$$\chi'_{3\omega}(z,t) = \alpha'_1(3\omega)\sigma_{11}(z,t) + \alpha'_2(3\omega)\sigma_{22}(z,t) \tag{12.168}$$

$$\chi''_{3\omega}(z,t) = \alpha''_1(3\omega)\sigma_{11}(z,t) + \alpha''_2(3\omega)(z,t)\sigma_{22}(z,t) \tag{12.169}$$

cîmpul armonicii de frecvența armonicii a treia fiind

$$\mathcal{E}_3(z,t) = E_3(z,t)e^{i(3\omega t - k_3 z)} + \text{c.c.} \tag{12.170}$$

De aici se observă că susceptibilitățile la frecvența fundamentalei și a armonicii a treia sînt dependente de intensitatea radiației incidente, fapt ce crează complicații în realizarea acordării indicilor.

Pentru a calcula cîmpul electric al armonicii a treia, polarizările avînd frecvența fundamentalei și armonicii, calculate cu ajutorul formalismului matricei densitate (12.164) — (12.165) se înlocuiesc în ecuațiile undelor. Considerînd că amplitudinile cîmpurilor variază lent în timp rezultă pentru amplitudinea cîmpului fundamentalei respectiv armonicii a treia, un set de ecuații diferențiale de ordinul întîi cuplate, de forma

$$\frac{\partial E}{\partial z} + \frac{1}{c}\frac{\partial E}{\partial t} = \frac{\omega N}{2c\varepsilon_0}\chi''_{\omega}E \tag{12.171}$$

$$\frac{\partial \Phi}{\partial z} + \frac{1}{c}\frac{\partial \Phi}{\partial t} = -\frac{\omega N}{2c\varepsilon_0}\chi'_{\omega} \tag{12.172}$$

$$\frac{\partial E_3}{\partial z} + \frac{1}{c}\frac{\partial E_3}{\partial t} = -i\frac{3\omega N}{2c\varepsilon_0}\xi\,\sigma_{12}^{(2)}E\,e^{i(\Phi - \Delta k z)} \tag{12.173}$$

unde N este densitatea vaporilor metalici,

$$\xi = h^{-1}\sum_{l}\left(\frac{d_{2l}\,d_{l1}}{\omega_{l1} - 3\omega} + \frac{d_{2l}\,d_{l1}}{\omega_{l1} + \omega}\right) \tag{12.174}$$

iar $\Delta k = 3k - k_3 =$

$$= (3\omega N/2c\varepsilon_0)\{[\alpha'_1(\omega) - \alpha'_1(3\omega)]\cdot\sigma_{11}(z,t) + [\alpha'_2(\omega) - \alpha'_2(3\omega)]\sigma_{22}(z,t) + 2h^{-1}\text{Re}[\upsilon_{12}^{*}e^{-i2\Phi}\sigma_{12}(z,t)]\} \tag{12.175}$$

reprezintă dezacordul vectorilor de undă.

Rezolvarea ecuațiilor cuplate de amplitudine (12.171) – (12.173), precum și a celor care conțin elementele de matrice ale operatorului densitate (12.152), (12.153) și (12.159) se face prin metode numerice cu ajutorul calculatorului.

În ecuațiile (12.166) – (12.167) cele două componente ale susceptibilității care determină absorbția rezonantă a doi fotoni (în fază respectiv defazată) pot conduce la automodularea fazei, precum și la apariția unor efecte de autofocalizare sau autodefocalizare dacă se lucrează cu fascicule gaussiene, din cauza redistribuirii populațiilor. Automodularea în fază poate afecta condiția de adaptare a indicilor și prin aceasta eficiența conversiei.

Ionizarea poate determina apariția fenomenelor de atenuare, de schimbare a vitezelor și chiar deformarea pulsului. Efectul ionizării poate fi mult redus în cazul folosirii metalelor alcaline ca medii neliniare dacă absorbția rezonantă a doi fotoni are loc între stări cu același moment cinetic orbital ($S \rightarrow S$); astfel orice canal de excitare a diferitelor stări în afara celui care determină absorbția rezonantă conduce sistemul înapoi în starea inițială.

Neîndeplinirea condiției de adaptare a indicilor ca rezultat al redistribuirii populațiilor poate conduce la scăderea eficienței conversiei dacă polarizabilitățile nivelelor $|1\rangle$ și $|2\rangle$ sînt de aceeași mărime dar de semne contrare. În cazul folosirii unor medii neliniare formate din vapori metalici care prezintă dispersie normală ($k_3 > 3k$) și acordarea indicilor cu ajutorul gazelor tampon sau fasciculelor gaussiene nu este posibilă, populația nivelului $|2\rangle$ și a celorlalte nivele excitate care pot fi populate, pot juca rolul de gaz tampon în vederea creșterii lungimii de coerență pentru generarea armonicii a treia.

Ecuația (12.173) poate fi mult simplificată dacă se lucrează cu pulsuri incidente a căror durată este mult mai mare decît cea corespunzătoare lungimii efective L a celulei cu gaz, cum ar fi, de exemplu, pulsurile date de laserii cu solid sau de cei acordabili. În aceste condiții derivata în raport cu timpul se poate neglija, iar expresia cîmpului devine

$$E_3(L, t) = -\mathrm{i}\,\frac{3\omega N}{2c\varepsilon_0}\,\xi\int_0^L \sigma_{12}^{(2)}(z,t)E(z, t)\mathrm{e}^{\mathrm{i}(\Phi-\Delta k z)}\,\mathrm{d}z. \qquad (12.176)$$

În cazul folosirii unor celule cu gaz nu prea lungi, care să determine variația locală a dezacordului indicilor și neglijînd efetele de automodulare se poate calcula numărul de fotoni corespunzători armonicii a treia, pe puls și pe unitatea de arie, cu relația

$$N_{3\omega} = \frac{3\omega N^2L^2}{4\hbar c^2\varepsilon_0^2}|\xi|^2\int\left(\frac{\sin[\Delta k(0,t)L/2]}{[\Delta k(0,t)L/2]}\right)^2 \times \qquad (12.177)$$

$$\times\ |\sigma_{12}^{(2)}(0, t)|^2 I(0,t)\mathrm{d}t$$

$I(0,t)$ fiind intensitatea radiației incidente. De asemenea se poate calcula fracțiunea de atomi ionizați pe puls

$$F_i = \gamma\int_0^{t_p}\sigma_{22}\,\mathrm{d}t \qquad (12.178)$$

unde t_p este durata pulsului laser, iar γ este rata ionizării (12.157).

Pe baza modelului prezentat mai înainte, într-un mediu neliniar format din vapori de litiu și de magneziu a căror presiuni parțiale se află în raportul $P_{Mg}/P_{Li} = 2{,}15$, iar presiunea vaporilor de litiu este de 1 torr, eficiența conversiei generării armonicii a treia prin absorbția rezonantă a doi fotoni, corespunzătoare tranziției $2s-4s$ este de aproximativ 8% pentru

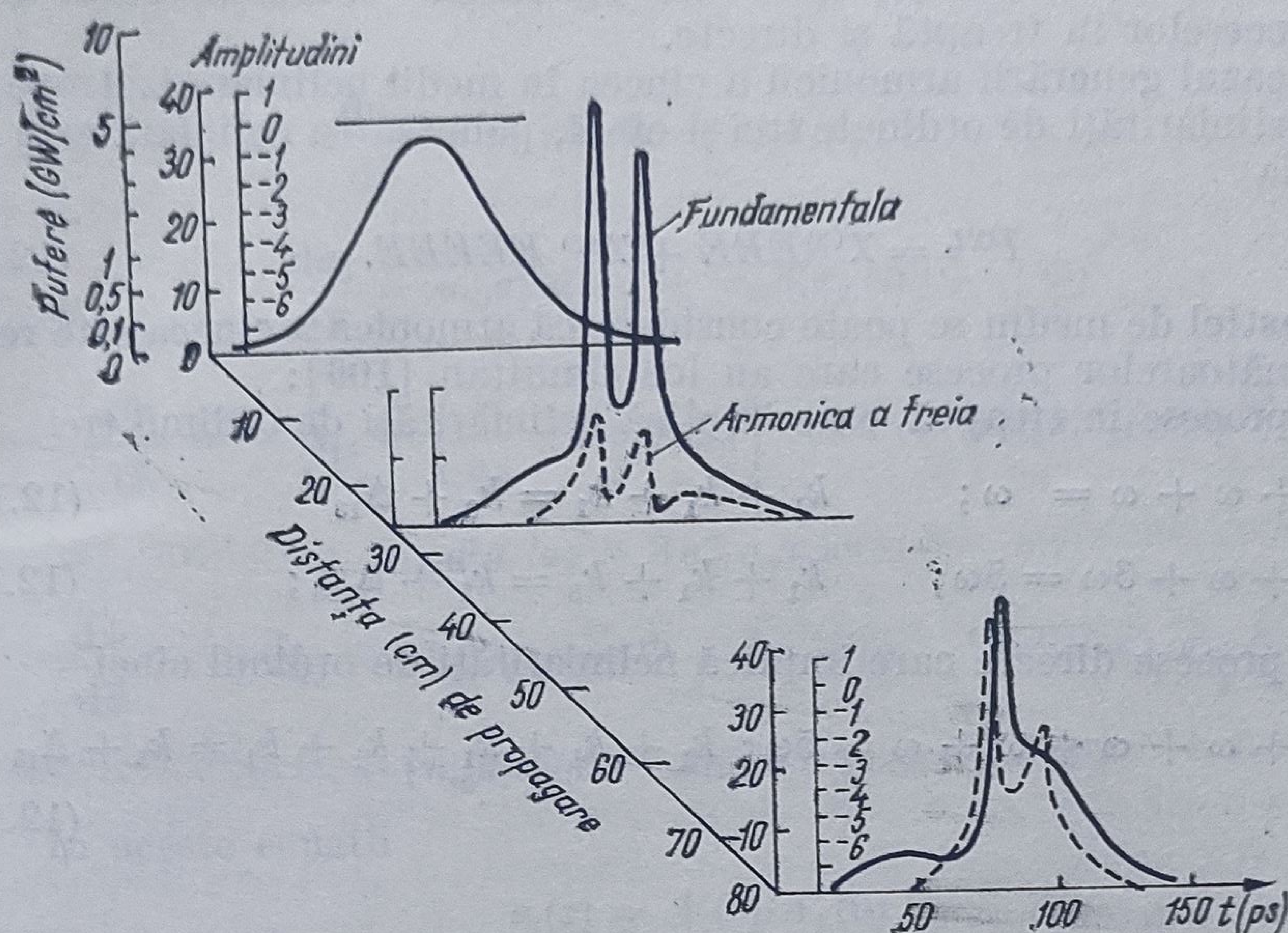


Fig. 12.11

o radiație laser cu puterea de 500 MW/cm² și o durată a pulsului de 200 ps. Alegerea vaporilor de litiu ca mediu neliniar este determinată de valoarea mare a susceptibilității neliniare de ordinul trei la rezonanță, de posibilitatea de acordare a indicilor, precum și de pierderile și efectele de saturație mici, datorită duratei pulsurilor care sînt mai mici decît timpul de ciocnire și respectiv de ionizare. Forma pulsului fundamentalei respectiv armonicii a treia funcție de distanță și de timp este prezentată în fig. 12.11.

12.3. Generarea armonicilor de ordin superior

Pentru generarea armonicii a doua și a treia s-au folosit procesele neliniare de ordinul doi și trei. O dată cu apariția și dezvoltarea laserilor de mare putere care funcționază în impulsuri cu durata foarte mică (de ordinul picosecundelor) s-a creat posibilitatea folosirii polarizărilor optice neliniare de ordine superioare la generarea armonicilor corespunzătoare. În vederea îmbunătățirii eficiențelor de conversie sistemele atomice trebuie alese în așa fel încît să permită un cîștig maxim rezultat din mixarea frecvențelor, pe baza relațiilor specifice între liniile de rezonanță și acordul indicilor.

O caracteristică importantă a generării armonicilor de ordin superior este legată de posibilitatea conversiei frecvențelor atît în urma proceselor directe care implică existența neliniarităților de ordinul armonicii studiate, cît și a proceselor în treaptă (indirecte) care implică existența neli-

niarităţilor de ordin inferior. De asemenea, dacă condiţia de adaptare a indicilor pentru procesele directe este satisfăcută, aceeaşi condiţie mai poate fi îndeplinită şi în cazul utilizării proceselor în treaptă pe ansamblul procesului de generare, chiar dacă fiecare treaptă în parte prezintă un anumit dezacord [102]. La calculul eficienţei conversiei trebuie luate în considerare totalitatea efectelor de interacţie coerentă rezultate în urma proceselor în treaptă şi directe.

În cazul generării armonicii a cincea în medii neliniare izotrope care posedă neliniarităţi de ordinele trei şi cinci, polarizarea neliniară este dată de relaţia

$$p^{NL} = \chi^{(3)} EEE + \chi^{(5)} EEEEE. \tag{12.179}$$

Într-un astfel de mediu se poate considera că armonica a cincea este rezultatul următoarelor procese care au loc simultan [106]:

— procese în treaptă, care implică neliniarităţi de ordinul trei

$$\omega + \omega + \omega = \omega; \qquad k_1 + k_1 + k_1 = k_3 + \Delta_{13} \tag{12.180}$$

$$\omega + \omega + 3\omega = 5\omega; \qquad k_1 + k_1 + k_3 = k_5 + \Delta_{135}; \tag{12.181}$$

— procese directe care implică neliniarităţi de ordinul cinci

$$\omega + \omega + \omega + \omega + \omega = 5\omega; \; k_1 + k_1 + k_1 + k_1 + k_1 = k_5 + \Delta_{15} \tag{12.182}$$

unde

$$\Delta_{13} + \Delta_{135} = \Delta_{15}. \tag{12.183}$$

În aproximaţia undei plane

$$E_j = A_j \exp(i\omega t - ik_j z). \tag{12.184}$$

cu ajutorul ecuaţiilor lui Maxwell pentru un mediu neliniar considerat fără pierderi, a cărui polarizare neliniară este dată de relaţia (12.179), rezultă pentru amplitudinile undelor care interacţionează următorul set de ecuaţii diferenţiale cuplate

$$\frac{dA_1}{dz} = -i\sigma_1 A_1^{*2} A_3 \exp i\Delta_{13} z - i\sigma_1' A_1^{*4} A_5 \exp i\Delta_{15} z - \tag{12.185}$$
$$- i\sigma_1'' A_1^{*} A_3 A_5 \exp i\Delta_{135} z$$

$$\frac{dA_3}{dz} = - i\sigma_3 A_1^3 \exp(- i\Delta_{13} z) - i\sigma_2 A_1^{*2} A_5 \exp i\Delta_{135} z \tag{12.186}$$

$$\frac{dA_5}{dz} = - i\sigma_5 A_1^5 \exp(- i\Delta_{15} z) - i\sigma_4 A_1^2 A_3 \exp(- i\Delta_{135} z) \tag{12.187}$$

unde

$$\sigma_1 = 6\pi\omega\chi^{(3)}/cn_1; \quad \sigma_1' = 10\pi\omega\chi^{(5)}/cn_1; \quad \sigma_1'' = 4\pi\omega\chi'^{(3)}/cn_1$$
$$\sigma_2 = 6\pi\omega\chi'^{(3)}/cn_3; \quad \sigma_3 = 6\pi\omega\chi^{(3)}/cn_3 \tag{12.188}$$
$$\sigma_4 = 10\pi\omega\chi'^{(5)}/cn_5; \quad \sigma_5 = 10\pi\omega\chi^{(5)}/cn_5.$$

Introducînd amplitudinile reale și fazele undelor

$$A_j(z) = A'_j(z)\exp\,(\mathrm{i}\,\theta_j(z)) \tag{12.189}$$

sistemul de ecuații complexe (12.185)–(12.187) devine

$$\frac{\mathrm{d}a_1}{\mathrm{d}\tilde{z}} = -\,\sigma_{10}a_1^2a_3\sin\Phi - \sigma'_{10}\,a_1^4\,a_5\sin\psi - \sigma''_{10}\,a_1a_3a_5\sin\,(\psi - \Phi) \tag{12.190}$$

$$\frac{\mathrm{d}a_3}{\mathrm{d}\tilde{z}} = a_1^3\sin\Phi - \sigma_{30}a_1^2a_5\,(\psi - \Phi) \tag{12.191}$$

$$\frac{\mathrm{d}a_5}{\mathrm{d}\tilde{z}} = \sigma_{50}a_1^5\sin\psi + \sigma_{40}a_1^2a_3\sin(\psi - \Phi) \tag{12.192}$$

$$\frac{\mathrm{d}\Phi}{\mathrm{d}\tilde{z}} = -\,\tilde{\Delta}_{13} + \left(\frac{a_1^3}{a_3} - 3\sigma_{10}a_1a_5\right)\cos\Phi - 3\sigma'_{10}a_1^3a_5\cos\psi +$$

$$+\,(\sigma_{20}a_1^2a_5/a_3 - 3\sigma''_{10}\,a_3a_5)\cos(\psi - \Phi) \tag{12.193}$$

$$\frac{\mathrm{d}\psi}{\mathrm{d}\tilde{z}} = -\,\tilde{\Delta}_{15} - 5\,\sigma_{10}a_1a_3\cos\Phi + (\sigma_{50}a_1^5/a_5 - 5\,\sigma'_{10}a_1^3a_5)\cos\psi +$$

$$+\,(\sigma_{40}a_1^3a_3/a_5 - 5\,\sigma''_{10}\,a_3a_5)\cos\,(\psi - \Phi). \tag{12.194}$$

În aceste ecuații

$$a_j(z) = A'_j(z)/A'_1(0) \tag{12.195}$$

$$\tilde{z} = z\sigma_3A_1'^2(0) = z/L_{30} \tag{12.196}$$

reprezintă amplitudinea respectiv coordonata normată,

$$\tilde{\Delta}_{13} = \Delta_{13}/\sigma_3A_{10}'^2\,;\ \tilde{\Delta}_{15} = \Delta_{15}/\sigma_2A_{10}'^2 \tag{12.197}$$

dezacordurile normate iar

$$\sigma_{10} = \sigma_1/\sigma_3\,;\quad \sigma_{20} = \sigma_2/\sigma_3\,;\quad \sigma_{40} = \sigma_4/\sigma_3\,;\quad \sigma'_{10} = \sigma_1/\sigma_3 \tag{12.198}$$

$$\sigma''_{10} = \sigma_1A_{10}'^2/\sigma_3\,;\quad \sigma_{50} = \sigma_5A_{10}'^2/\sigma_3 \tag{12.199}$$

$$\Phi = 3\,\theta_1 - \theta_3 - \Delta_{13}z \tag{12.200}$$

$$\psi = 5\,\theta_1 - \theta_5 - \Delta_{15}z. \tag{12.201}$$

Sistemul de ecuații cuplate (12.190) – (12.194) a fost integrat numeric pentru parametrii corespunzători unei mixturi de Na, Cd și Xe admițîndu-se următoarele condiții inițiale [106]

$$a_1(0) = 1,\ a_3(0) = a_5(0) = 10^{-5},\ \Phi(0) = \psi(0) = 0. \tag{12.202}$$

Calculele teoretice efectuate prevăd posibilitatea obținerii unei eficiențe de conversie foarte ridicate, de aproximativ 90%, în mixturi ale vaporilor metalici care permit realizarea acordului indicilor atît pentru procesele în treaptă cît și directe ($\tilde{\Delta}_{13} = \tilde{\Delta}_{15} = 0$), iar densitățile de putere ale radiației incidente trebuie să fie astfel încît $\sigma_{10} = \sigma_{50} = 1$ ($9{,}1\cdot10^{12}$ W/cm^2).

Dependența de distanța normată $\tilde{z}$ a amplitudinilor armonicilor pentru parametrii menționați înainte este prezentată în fig. 12.12.

Armonica a cincea poate să rezulte și în urma proceselor în treaptă pentru care dezacordurile sînt: $\tilde{\Delta}_{15} = 0$, $\tilde{\Delta}_{13} = -4{,}54$ și corespunde unei concentrații $N_{Na} = 10^{17}$ atomi/cm^3, $N_{Cd}/N_{Na} = 3{,}35$ care se realizează la temperatura $T = 810$ K și densitatea de putere $2 \cdot 10^{11}$ W/cm^2. Dependența de distanța normată a amplitudinilor armonicilor de diferite ordine (3,5 în acest caz) este prezentată în fig. 12.13.

Fig. 12.12

Competiția între procesele directe și în treaptă se manifestă pentru valori ale dezacordului $\tilde{\Delta}_{13} = -9{,}32$ ($N_{Cd} = 10^{22}$ atom/cm^3).

Pentru densități de putere mari ale radiației incidente ($9{,}1 \cdot 10^{12}$ W/cm^2) procesele directe contribuie aproximativ în aceeași măsură la procesul de generare ca și procesele în treaptă chiar la valori mari ale dezacordului $\tilde{\Delta}_{13} = -9{,}32$ (fig. 12.14).

În cazul folosirii fasciculelor gaussiene pentru generarea armonicii a cincea se poate obține o soluție analitică dacă se neglijează scăderea amplitudinii fundamentalei, precum și cea a armonicii a treia în cadrul proceselor în treaptă. Cu aceste simplificări, pe baza modelului prezentat în lucrarea

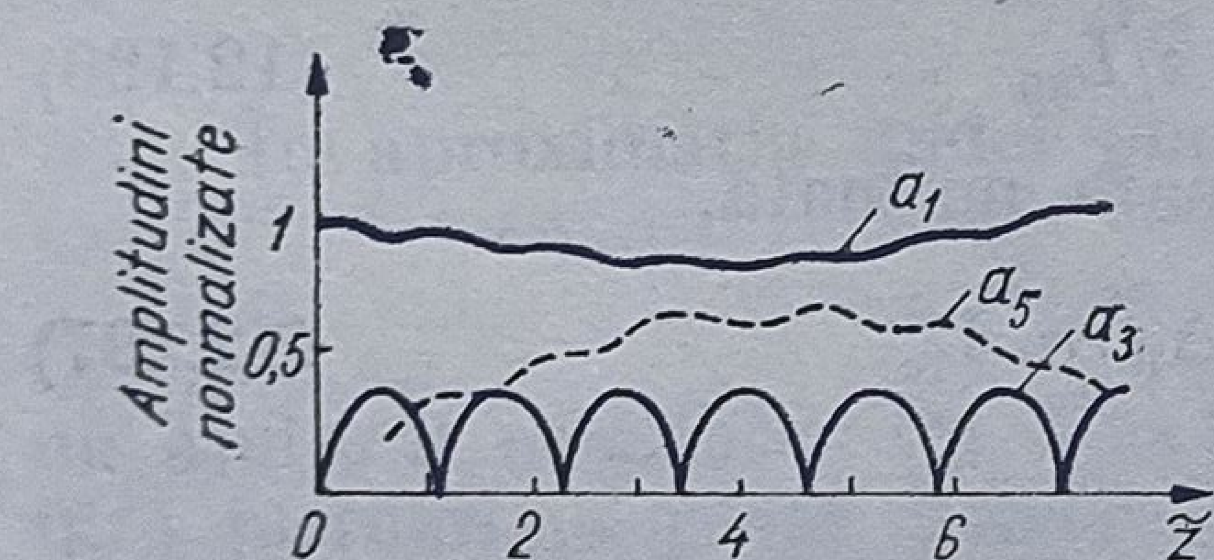


Fig. 12.13

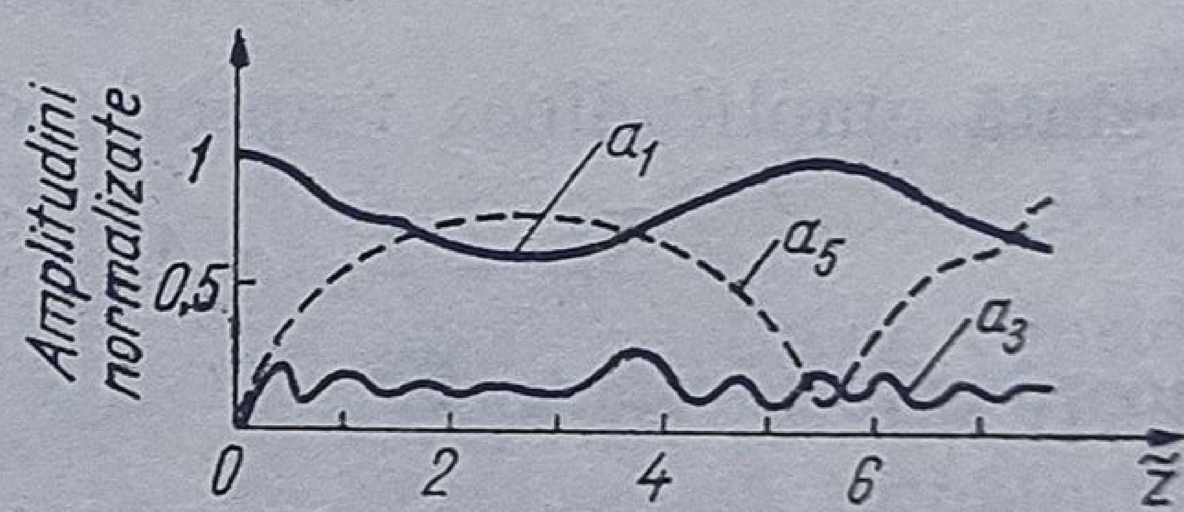


Fig. 12.14

[106], generarea armonicii a cincea este descrisă de următorul set de ecuații cu derivate parțiale

$$\left[\frac{\partial}{\partial z} + \frac{i}{2k_1}\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)\right] A_1 = 0 \qquad (12.203)$$

$$\left[\frac{\partial}{\partial z} + \frac{i}{2k_3}\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)\right] A_3 = -i\sigma_3 A_1^3 \exp(-i\Delta_{13} z) \qquad (12.204)$$

$$\left[\frac{\partial}{\partial z} + \frac{i}{2k_5}\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)\right] A_5 = -i\sigma_5 A_1^5 \exp(-i\Delta_{15} z) -$$

$$- i\sigma_4 A_1^2 A_3 \exp(-i\Delta_{135} z). \qquad (12.205)$$

Soluţia sistemului de ecuaţii (12.203) — (12.205) corespunzătoare configuraţiei experimentale din fig. 12.15 şi următoarelor condiţii iniţiale

$$A_3(x,\ y,\ l_1) = A_5(x,\ y,\ l_1) = 0 \tag{12.206}$$

este

$$A_5(x,\ y,\ l_2) = -\frac{i\sigma_5 LB_{10}\exp(-i\Delta_{15}f_1)}{2(1-iq_1)}\exp\left[-\frac{5k_1(x^2+y^2)}{b_1(1-iq_1)}\right]\cdot J_1 \tag{12.207}$$

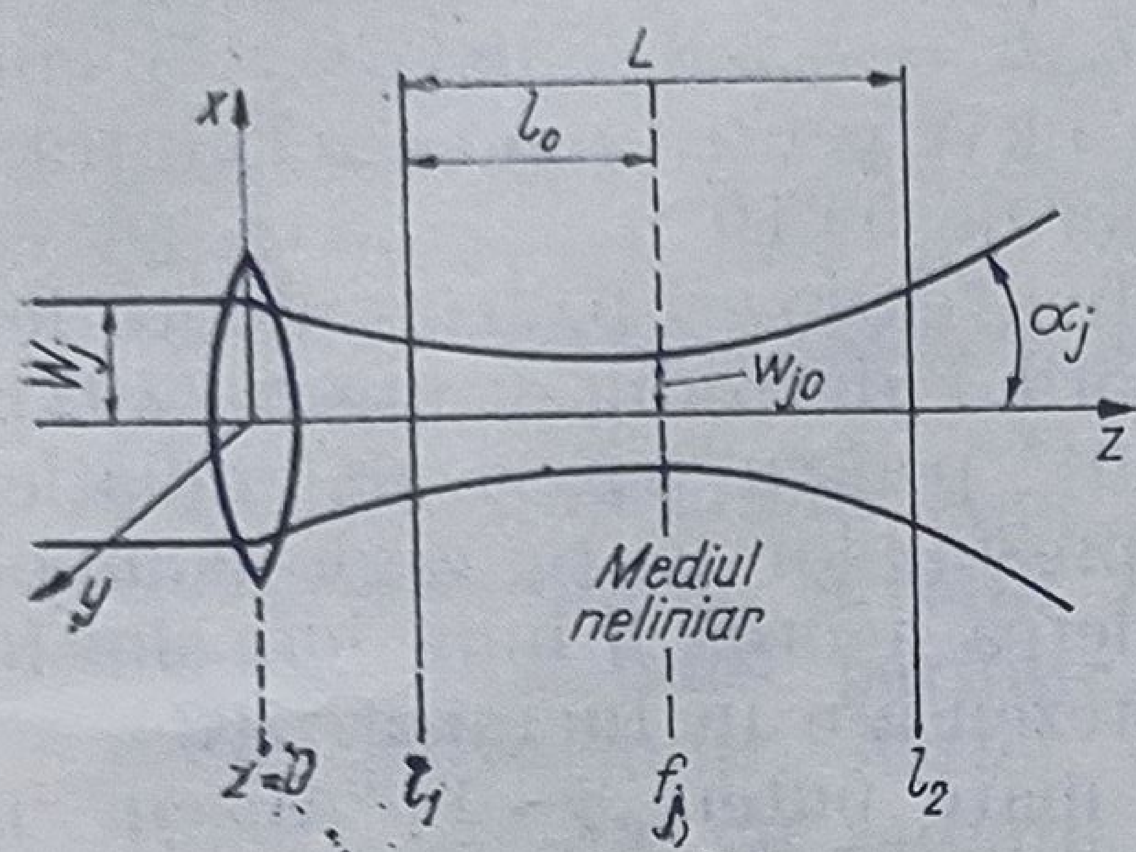


Fig. 1215

unde

$$J_1(\Delta_{15}L/2,\ \Delta_{13}L/2,\ w, q_1,\ d) = \int_{-2d}^{2(l-d)} \frac{\exp(-i\Delta_{15}L\eta/2)d\eta}{(1-iq_1\eta)^4} - iwL\int_{-2d}^{2(l-d)}\frac{\exp(-i\Delta_{135}L\eta/2)d\eta}{(1-iq_1\eta)^2}\times$$

$$\times\int_{-2d}^{\eta}\frac{\exp(-i\Delta_{13}L\tau/2)d\tau}{(1-iq_1\tau)^2} = J_d - iwLJ_s. \tag{12.208}$$

$$w = \sigma_3\sigma_4/2\sigma_5;\ q_1 = \frac{L}{b_1};\ b_1 = kw_0^2;\ d = \frac{l_0}{L}. \tag{12.209}$$

Cu ajutorul expresiei amplitudinii (12.207) se poate calcula puterea armonicii a cincea

$$P_5 = \frac{32.768\, k_1^4\, P_{10}^5\, \sigma_5^2 q_1^2}{5\, c^4 n_1^4 b_1^2}|J_1|^2. \tag{12.210}$$

În cazul focalizării slabe $q_1 < 1$, puterea maximă se obţine dacă sînt îndeplinite condiţiile de adaptare a indicilor $\Delta_{13} = \Delta_{15} = 0$, iar expresia integralei J_1 devine

$$J_1 = \frac{6-8q_1^2(1-3d-3d^2)-i12q_1(1-2d)-i6wL(1-i2q_1d)(1-i2q_1+i2q_1d)}{3(1+i\,2q_1d)^3[1-i2q_1(1-d)]^3} \tag{12.211}$$

Maximul funcţiei (12.211) se obţine pentru $d = \frac{1}{2}$. Focalizarea puternică ($q_1 > 1$) produce deplasarea fazei, astfel că în calcule trebuie introdus un dezacord Δ_{jk}, care să compenseze această deplasare. Considerînd fasciculul focalizat în centrul celulei cu gaz $\left(d = \frac{1}{2}\right)$, în cazul generării armonicii

a cincea prin procese directe ($\chi'^{(5)} = \chi^{(3)} = 0$), $J_1 \equiv J_d$ şi are valoarea maximă pentru $\Delta_{15} = 6/b_1$. Dacă se iau în considerare procesele în treaptă

$$J_s(\Delta_{135}L/2,\ \Delta_{13}L/2,\ q_1) = \mathrm{Re}\,J_s + \mathrm{i}\,\mathrm{Im}\,J_s \qquad (12.212)$$

iar valoarea maximă a funcţiei $\mathrm{Re}J_s$ se obţine pentru $\Delta_{13} = 2\Delta_{135} = 2/b_1$ şi corespunde unei valori $\Delta_{15} = 2\Delta_{13} = 4/b_1$.

Rezultatele experimentale privind generarea armonicii a cincea într-o mixtură de vapori de sodiu şi xenon ($N_{Xe}/N_{Na} = 31,2$), utilizînd fascicule gaussiene [102] au confirmat calculele teoretice prezentate în lucrările [106, 102] obţinîndu-se pentru $b\Delta k = -5,8 \pm 0,3$ ($b = 5$ cm; $f = 28$ cm) o putere maximă a armonicii de 4 kW pentru o putere la intrare de $2,5 \cdot 10^8$ W, deci o eficienţă a conversiei de $5 \cdot 10^{-5}$.

Generarea armonicii a cincea mai poate avea loc şi pe baza absorbţiei rezonante a doi fotoni în mixturi ale vaporilor de sodiu şi argon [102]. Eficienţele de conversie maxime de $5,4 \cdot 10^{-2}$ pentru puteri ale radiaţiei incidente de $1,5 \cdot 10^8$ W/cm^2 şi raportul presiunilor parţiale ale componenţilor mixturii $N_{Na} : N_{Ar} = 1 : 50,3$ în vederea acordării indicilor, sînt în bună concordanţă cu modelele teoretice prezentate în lucrarea [102].

Utilizînd pentru excitare pulsuri de mare putere ($\sim 10^{10}$ W$\cdot$cm^{-2}), cu durata de ~ 10 ps, provenite de la un laser cu Nd^{3+} ($\lambda = 1,06$ μm) care lucrează în regim de „mode-locking'' au fost obţinute în mixturi ale vaporilor de Na şi Ar atît armonica a şaptea cît şi a noua [156] cu o eficienţă a conversiei de $\sim 10^{-16}$, atît în urma proceselor directe cît şi a celor în treptă.

De asemenea, armonicile de ordinele cinci şi şapte (cu $\lambda_5 = 76$ nm şi $\lambda_7 = 38$ nm) au fost produse şi în gaze rare [131] folosindu-se pentru excitare fascicule foarte intense ($\sim 10^{15}$ W/cm^2) obţinute prin focalizarea unei radiaţii provenite de la un laser cu Nd-YAG.

13. GENERAREA PARAMETRICĂ DE OSCILAŢII OPTICE

13.1. Interacţia parametrică a patru unde într-un mediu neliniar

Interacţiile care caracterizează fenomenele optice neliniare pot fi considerate parametrice în cazul cînd unul dintre cîmpurile care interacţionează în mediul neliniar, numit de pompaj, este mult mai puternic şi determină variaţia parametrică a unor mărimi caracteristice ale mediului.

Interacţia parametrică descrie un transfer de energie între cîmpurile oscilatorii participante, ca urmare a cuplării acestora printr-un element neliniar. Deci, elementul neliniar trebuie să aibă un caracter reactiv în raport

a cincea prin procese directe ($\chi'^{(5)} = \chi^{(3)} = 0$), $J_1 \equiv J_d$ și are valoarea maximă pentru $\Delta_{15} = 6/b_1$. Dacă se iau în considerare procesele în treaptă

$$J_s(\Delta_{135} L/2,\ \Delta_{13} L/2,\ q_1) = \mathrm{Re}\, J_s + \mathrm{i}\, \mathrm{Im}\, J_s \qquad (12.212)$$

iar valoarea maximă a funcției $\mathrm{Re} J_s$ se obține pentru $\Delta_{13} = 2\Delta_{135} = 2/b_1$ și corespunde unei valori $\Delta_{15} = 2\Delta_{13} = 4/b_1$.

Rezultatele experimentale privind generarea armonicii a cincea într-o mixtură de vapori de sodiu și xenon ($N_{Xe}/N_{Na} = 31{,}2$), utilizînd fascicule gaussiene [102] au confirmat calculele teoretice prezentate în lucrările [106, 102] obținîndu-se pentru $b\Delta k = -5{,}8 \pm 0{,}3$ ($b = 5$ cm; $f = 28$ cm) o putere maximă a armonicii de 4 kW pentru o putere la intrare de $2{,}5 \cdot 10^8$ W, deci o eficiență a conversiei de $5 \cdot 10^{-2}$.

Generarea armonicii a cincea mai poate avea loc și pe baza absorbției rezonante a doi fotoni în mixturi ale vaporilor de sodiu și argon [102]. Eficiențele de conversie maxime de $5{,}4 \cdot 10^{-2}$ pentru puteri ale radiației incidente de $1{,}5 \cdot 10^8$ W/cm^2 și raportul presiunilor parțiale ale componenților mixturii $N_{Na} : N_{Ar} = 1 : 50{,}3$ în vederea acordă ii indicilor, sînt în bună concordanță cu modelele teoretice prezentate în lucrarea [102].

Utilizînd pentru excitare pulsuri de mare putere ($\sim 10^{10}$ W$\cdot$cm^{-2}), cu durata de ~ 10 ps, provenite de la un laser cu Nd^{3+} ($\lambda = 1{,}06$ μm) care lucrează în regim de „mode-locking'' au fost obținute în mixturi ale vaporilor de Na și Ar atît armonica a șaptea cît și a noua [156] cu o eficiență a conversiei de $\sim 10^{-16}$, atît în urma proceselor directe cît și a celor în treaptă.

De asemenea, armonicile de ordinele cinci și șapte (cu $\lambda_5 = 76$ nm și $\lambda_7 = 38$ nm) au fost produse și în gaze rare [131] folosindu-se pentru excitare fascicule foarte intense ($\sim 10^{15}$ W/cm^2) obținute prin focalizarea unei radiații provenite de la un laser cu Nd-YAG.

13. GENERAREA PARAMETRICĂ DE OSCILAȚII OPTICE

13.1. Interacția parametrică a patru unde într-un mediu neliniar

Interacțiile care caracterizează fenomenele optice neliniare pot fi considerate parametrice în cazul cînd unul dintre cîmpurile care interacționează în mediul neliniar, numit de pompaj, este mult mai puternic și determină variația parametrică a unor mărimi caracteristice ale mediului.

Interacția parametrică descrie un transfer de energie între cîmpurile oscilatorii participante, ca urmare a cuplării acestora printr-un element neliniar. Deci, elementul neliniar trebuie să aibă un caracter reactiv în raport

cu cîmpurile aplicate care pot fi de natură electromagnetică, acustică sau mecanică.

Așa cum s-a arătat la § 8.1, în cazul interacției a patru unde de frecvențe ω_1, ω_2, ω_3, ω_4, într-un mediu neliniar caracterizat prin simetrie de inversie, termenul care conține polarizarea neliniară cu frecvența $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$, joacă rolul unei surse în ecuațiile cîmpului electromagnetic, generînd o radiație cu frecvența ω_4, a cărei intensitate este proporțională cu pătratul susceptibilității neliniare de ordinul trei $|\chi^{(3)}_{ijk}(-\omega_4;\ \omega_1,\ \omega_2,\ \omega_3)|^2$.

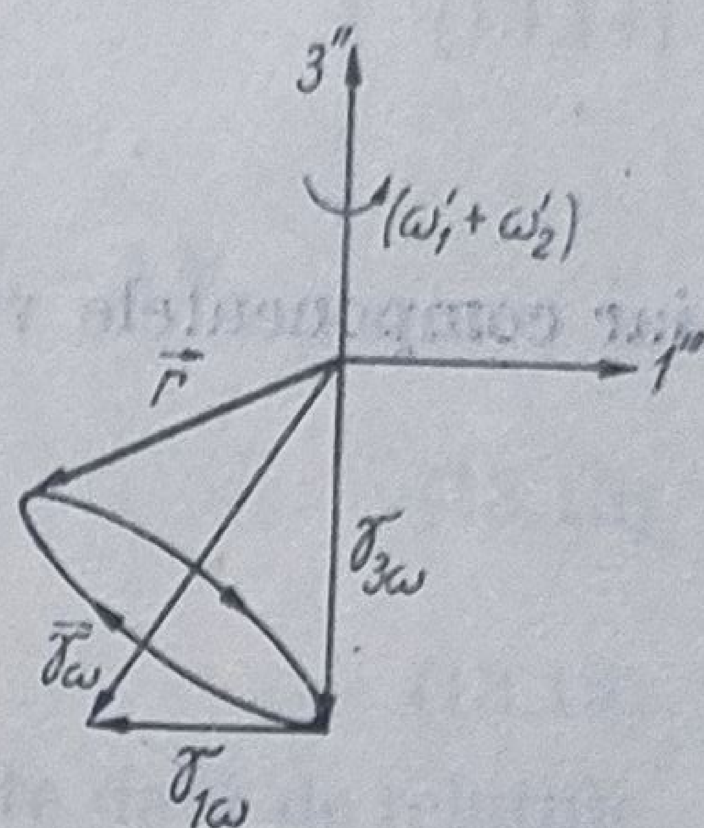


Fig. 13.1

Dacă este îndeplinită condiția $\omega_3 = \omega_1$, conform relațiilor (8.2) și (8.4) se obține o polarizare a cărei frecvență este $\omega_4 = 2\omega_1 + \omega_2$, iar intensitatea radiației corespunzătoare acestei frecvențe este proporțională cu $|\chi^{(3)}(-2\omega_1 - \omega_2;\ \omega_2,\ \omega_1)|^2$. În cazul rezonanței, obținută cînd 2ω corespunde diferenței energetice dintre nivelul fundamental și un nivel excitat de aceeași paritate, eficiențele de conversie cresc foarte mult. Astfel, excitîndu-se un mediu neliniar format din vapori de Na cu radiații avînd $\lambda_1 = 694{,}3$ nm și $\lambda_2 = 10{,}6$ μm (cea din urmă provenind de la un laser cu CO_2, în regim continuu) s-au obținut radiații în domeniul U.V. al spectrului avînd $\lambda = 332{,}1 - 330{,}5$ nm, cu o eficiență de $\simeq 16{,}2\%$ [102]. Prin absorbția a doi fotoni cu λ_1, se produce o populare efectivă a nivelului $4d$, iar în urma iradierii cu radiația λ_2 atomii de Na sînt excitați pe nivelul $5\ p$, de unde revin pe nivelul fundamental în urma fluorescenței (fig. 8.1, d).

Dacă în relațiile (8.2) și (8.4) ω_2 se înlocuiește cu $-\omega_2$, atunci se obține o radiație a cărei frecvență este $2\omega_1 - \omega_2$, pentru care sînt posibile rezonanțe intermediare obținute atît prin absorbția a doi fotoni $2\omega_1$, cît și a radiației cu $\omega_1 - \omega_2$ (fig. 18.1, f).

13.2. Descrierea fenomenelor de mixare neliniară și de propagare a undelor în medii neliniare

Calculul susceptibilităților și polarizabilităților neliniare de diferite ordine, care împreună cu ecuațiile cîmpului electromagnetic stau la baza teoriei proceselor de mixare neliniară, poate fi făcut utilizînd teoria perturbațiilor de ordinul doi dependentă de timp [110] (anexa 3). Această teorie nu mai poate fi aplicată în cazul studiului proceselor de generare parametrică care au loc la rezonanță, cînd eficiențele de conversie cresc foarte mult.

Studiul proceselor neliniare care au loc la rezonanță, precum și propagarea radiațiilor generate în medii neliniare, poate fi făcut cu ajutorul modelului vectorial în aproximația adiabatică [122].

Pe baza acestui model, componentele vectorului unitate **r** care execută o mișcare de precesie în jurul vectorului viteză unghiulară $\boldsymbol{\gamma}_\omega$

$$\frac{\partial \mathbf{r}}{\partial t} = \boldsymbol{\gamma}_\omega \times \mathbf{r} \tag{13.1}$$

conform fig. 13.1 pot fi exprimate cu ajutorul elementelor matricei densitate astfel

$$r_1 = \rho''_{12} + \rho''_{21} \tag{13.2}$$

$$r_2 = i(\rho''_{12} - \rho''_{21}) \tag{13.3}$$

$$r_3 = \rho''_{11} - \rho''_{22} \tag{13.4}$$

iar componentele vectorului γ sînt de forma

$$\gamma_{1\omega} = \frac{1}{\hbar}(H''_{E_{12}} + H''_{E_{21}}) \tag{13.5}$$

$$\gamma_{2\omega} = \frac{i}{\hbar}(H''_{E_{12}} - H''_{E_{21}}) \tag{13.6}$$

$$\gamma_{3\omega} = \frac{1}{\hbar}(H''_{E_{11}} - H''_{E_{22}}). \tag{13.7}$$

În cazul tranzițiilor care implică doi fotoni cu frecvențe diferite ω_1 și ω_2 ale cîmpurilor de pompaj

$$E = E_1 \cos(\omega_1 t + \Phi_1 - k_1 z) + E_2 \cos(\omega_2 t + \Phi_2 - k_2 z) \tag{13.8}$$

care au loc între nivelele $|1\rangle$ și $|2\rangle$ (fig. 13.2), relațiile (13.5) — (13.7) devin

$$\gamma_{1\omega} = -\varkappa E_1 E_2 \tag{13.9}$$

$$\gamma_{2\omega} = 0 \tag{13.10}$$

$$\gamma_{3\omega} = \Omega_{12} - (\omega'_1 + \omega'_2) + \frac{1}{\hbar}(\Delta E_1 - \Delta E_2) \tag{13.11}$$

unde

$$\varkappa = \frac{1}{2\hbar^2}\left|\sum_n d_{1n} \cdot d_{n2}\left(-\frac{1}{\Omega_{n2} - \omega_1} + \frac{1}{\Omega_{n2} - \omega_2}\right)\right|. \tag{13.12}$$

Fig. 13.2

În relațiile de mai sus, $|\gamma_{1\omega}|$ reprezintă frecvența de precesie Rabi corespunzătoare celor doi fotoni iar $\gamma_{3\omega}$ corespunde dezacordului celor doi fotoni la rezonanță, în care este inclus și efectul Stark.

Expresiile pentru hamiltonianul sistemului H''_E și operatorul densitate ρ'' se obțin cu ajutorul a două transformări unitare [122] în urma cărora se elimină timpul din expresia hamiltonianului sistemului, considerat ca avînd trei nivele energetice

$$H = H_0 - \mathbf{dE}. \tag{13.13}$$

Cu aceste transformări expresia hamiltonianului devine

$$H_g'' = \begin{bmatrix} \hbar(\Omega_1 - \omega_1') + \Delta E_1 & \dfrac{d_{1n}d_{n2}E_1E_2}{4\hbar\,\Delta\omega} & 0 \\ \dfrac{d_{2n}d_{n1}E_1E_2}{4\hbar\Delta\omega} & \hbar(\Omega_2+\omega_2')+\Delta E_2 & 0 \\ 0 & 0 & \hbar\Omega_{n2}-\Delta E_1-\Delta E_2 \end{bmatrix} \quad (13.14)$$

unde

$$\frac{1}{\Delta\omega} = \frac{1}{2}\left(\frac{1}{\omega_1' - \Omega_{2n}} + \frac{1}{\Omega_{1n} - \omega_2'}\right) \quad (13.15)$$

$$\Omega_{ij} = \Omega_i - \Omega_j. \quad (13.16)$$

Deplasarea frecvențelor datorită efectului Stark este dată de relațiile

$$\Delta E_1 = |d_{1n}\mathbf{E}_1|^2/4\hbar(\Omega_{1n} - \omega_1) \quad (13.17))$$

$$\Delta E_2 = |d_{2n}\mathbf{E}_2|^2/4\hbar(\omega_{2n} - \Omega_{n2}) \quad (13.18)$$

iar

$$\omega_1' - \omega_1 = \frac{\partial\Phi_1}{\partial t} \quad (13.19)$$

$$\omega_2' - \omega_2 = \frac{\partial\Phi_2}{\partial t} \quad (13.20)$$

corespund automodulării fazelor radiațiilor de pompaj. În cazul aproximației adiabatice, aplicată tranzițiilor care implică doi fotoni, vectorul unitate $\mathbf{r}$ este de-a lungul vectorului γ_ω (fig. 13.3), iar susceptibilitatea neliniară astfel obținută descrie interacția cvasirezonantă a dielectricului cu radiația de pompaj. Ținînd seama de expresiile componentelor vectorilor unitate

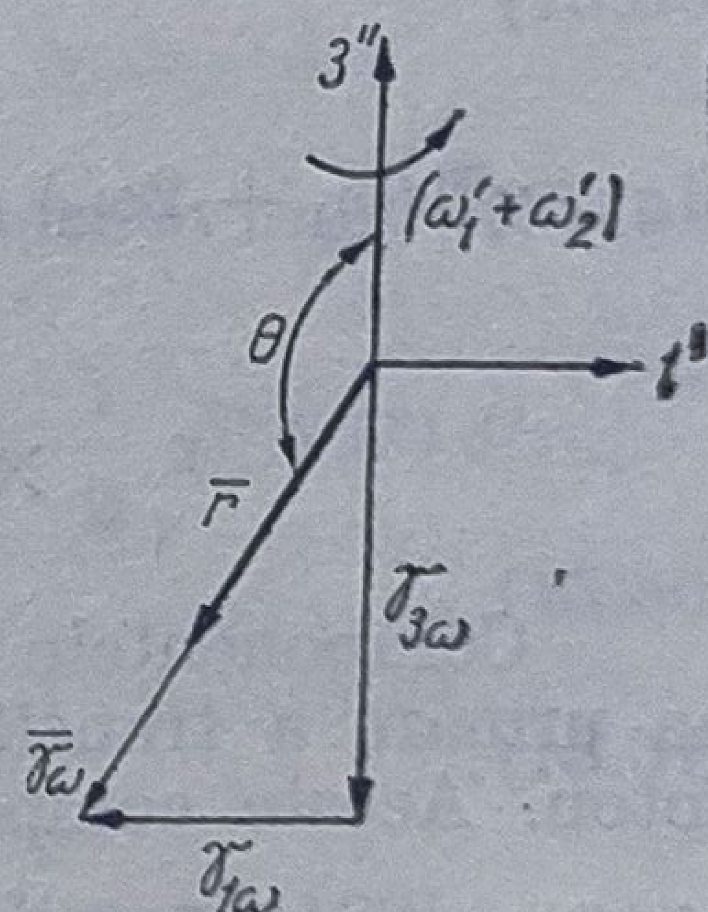


Fig. 13.3

$$r_1 = \mp \sin\,\theta = \mp \frac{\gamma_{1\omega}}{\gamma_\omega} \quad (13.21)$$

$$r_2 = -\frac{1}{\gamma_{3\omega}}\frac{\partial r_1}{\partial t} \quad (13.21')$$

$$r_3 = \mp \cos\,\theta = \mp \frac{\bar{\gamma}_{3\omega}}{\gamma_\omega} \quad (13.22)$$

cu

$$\bar{\gamma_\omega} = (\gamma_{1\omega}^2 + \gamma_{3\omega}^2)^{1/2}, \quad (13.23)$$

și de reprezentarea matricei densitate

$$\rho''(t) = \frac{1}{2}\begin{bmatrix} 1+r_3 & r_1 - ir_2 \\ r_1 + ir_2 & 1 - r_3 \end{bmatrix} \quad (13.24)$$

cu ajutorul relaților (13.2)—(13.4), componentele polarizării neliniare se obțin sub forma

$$P_1(t) = \frac{1}{2}\,[\chi_1(\omega_1)(1 \mp \cos\,\theta) + \chi_2(\omega_1)(1 \pm \cos\,\theta)]\,E_1\cos\,(\omega_1 t + \Phi_1 - k_1 z) +$$

$$+ \frac{1}{2}\,[\chi_1(\omega_2)(1 \mp \cos\,\theta) + \chi_2(\omega_2)\,(1 \pm \cos\,\theta)]\,E_2\cos\,(\omega_2 t + \Phi_2 - k_2 z). \quad (13.25)$$

$$P_2(t) = \frac{1}{4}\,\mathrm{Re}\,\chi^{(3)}\left[E_1 e^{-i(\omega_2 t + \Phi_2 - k_2 z)} + E_2 e^{-i(\omega_1 t + \Phi_1 - k_1 z)}\right] \times$$

$$\times \left(1 - \frac{i}{\gamma_{3\omega}}\frac{\partial}{\partial t}\right) E_1 E_2 \left|\frac{\delta}{\gamma_p}\right| \tag{13.26}$$

$$P_3(t) = \frac{1}{4}\,\mathrm{Re}\,\{\chi^{(3)}(2\omega_1 + \omega_2) E_1 e^{-i[2(\omega_1 t + \Phi_1 - k_1 z) + (\omega_2 t + \Phi_2 - k_2 z)]} +$$

$$+ \chi^{(3)}(\omega_1 + 2\omega_2) E_2 e^{-i[(2\omega_1 t + \Phi_1 - k_1 z) + 2(\omega_2 t + \Phi_2 - k_2 z)\}} \times$$

$$\times \left(1 + \frac{i}{\gamma_{3\omega}}\frac{\partial}{\partial t}\right) E_1 E_2 \left|\frac{\delta}{\gamma_p}\right|. \tag{13.27}$$

În relațiile (13.25)—(13.27) s-au făcut următoarele notații

$$\delta = \Omega_{12} - (\omega_1 + \omega_2) \tag{13.28}$$

$$\chi^{(3)} = \frac{1}{\hbar^3}\sum_{m,n}\frac{d_{2n}d_{n1}d_{1m}d_{m2}}{\delta}\left(\frac{1}{\Omega_{m2} - \omega_1} + \frac{1}{\Omega_{m2} - \omega_2}\right) \times$$

$$\times \left(\frac{1}{\Omega_{n2} + \omega_1} + \frac{1}{\Omega_{n2} - \omega_2}\right) \tag{13.29}$$

$$\chi^{(3)}(2\omega_1 + \omega_2) = \frac{1}{\hbar^3}\sum_{m,n}\frac{d_{2n}d_{n1}d_{1m}d_{m2}}{\delta}\left(\frac{1}{\Omega_{m2} - \omega_1} + \frac{1}{\Omega_{m2} - \omega_2}\right) \times$$

$$\times \left(\frac{1}{\Omega_{n2} + \omega_1} + \frac{1}{\Omega_{n2} - (2\omega_1 + \omega_2)}\right) \tag{13.30}$$

$$\chi^{(3)}(\omega_1 + 2\omega_2) = \frac{1}{\hbar^3}\sum_{m,n}\frac{d_{n2}d_{n1}d_{1m}d_{m2}}{\delta}\left(\frac{1}{\Omega_{m2} - \omega_1} + \frac{1}{\Omega_{m2} - \omega_2}\right) \times$$

$$\times \left(\frac{1}{\Omega_{n2} + \omega_2} + \frac{1}{\Omega_{n2} - (\omega_1 + 2\omega_2)}\right). \tag{13.31}$$

Componentele polarizării P_1 dau naștere fenomenului de dispersie ca urmare a tranzițiilor $|1\rangle \to |n\rangle$ și $|2\rangle \to |n\rangle$ care implică un singur foton. Aceste componente sînt proporționale cu populațiile stărilor $|1\rangle$ și $|2\rangle$ care sînt date de $\frac{1}{2}(1 \mp \cos\theta)$ respectiv $\frac{1}{2}(1 \pm \cos\theta)$. Componentele lui P_2 oscilează cu frecvența cîmpurilor de pompaj și pot fi interpretate ca fiind rezultatul mixării neliniare ale acestor cîmpuri în procesul de generare a radiațiilor cu frecvențele $\omega_1 + \omega_2 - \omega_1$ și $\omega_1 + \omega_2 - \omega_2$. De asemenea, ele joacă un rol foarte important în procesul de propagare, determinînd fenomenele de autofocalizare sau autodefocalizare și automodulare care limitează procesele de mixare parametrică și generează radiații cu frecvențele $\omega_1 + \omega_2 + \omega_1$ și $\omega_1 + \omega_2 + \omega_2$ ce sînt descrise de componentele polarizării P_3.

Expresiile obținute pentru susceptibilitățile neliniare (13.29)—(13.31), pe baza modelului vectorial, în aproximația adiabatică, sînt funcții de intensitatea radiației incidente și diferă de expresiile susceptibilităților care

nu depind de intensitate, care au fost obținute pe baza teoriei perturbațiilor [110, 112] numai printr-un factor de putere (δ/γ_p) unde

$$\gamma_p = \left\{\left[\Omega_{12} - (\omega_1' + \omega_2') + \frac{(\Delta E_1 - \Delta E_2)}{\hbar}\right]^2 + (\varkappa E_1 E_2)^2\right\}^{1/2}. \tag{13.32}$$

Se observă că factorul de putere devine egal cu unitatea cînd E_1 și $E_2 \to 0$ în timp ce pentru valori mari ale cîmpurilor dezacordul frecvențelor δ poate fi neglijat în comparație cu cel determinat de efectul Stark. Pentru valori intermediare ale intensității cîmpurilor, dezacordul frecvențelor δ devine comparabil cu cel datorat efectului Stark, iar dependența de frecvență, este mai complicată, fiind determinată de diferența $(\Delta E_1 - \Delta E_2)$ pentru fiecare sistem atomic în parte.

Expresiile obținute pentru polarizarea neliniară pot fi înlocuite în ecuațiile cîmpului electromagnetic în vederea evaluării amplitudinilor și fazelor cîmpurilor care interacționează într-un anumit mediu neliniar (cap. 12). De asemenea, mai pot fi investigate deformarea pulsului rezultat în urma unei tranziții care implică doi fotoni, precum și automodularea fazei. În aproximația unei variații lente a fazei Φ și a amplitudinii E a cîmpului electric incident, considerat circular polarizat

$$\mathscr{E} = E(\mathbf{i}\cos(\omega t + \varphi - kz) + \mathbf{j}\sin(\omega t + \varphi - kz)) \tag{13.33}$$

propagarea pulsului este descrisă de așa numitele ecuații de undă reduse

$$\frac{\partial E}{\partial z} + \frac{1}{c}\frac{\partial E}{\partial t} = -\frac{2\pi\omega}{c} v \tag{13.34}$$

$$\frac{\partial \Phi}{\partial z} + \frac{1}{c}\frac{\partial \Phi}{\partial t} = -\frac{2\pi\omega}{c}\frac{u}{E} \tag{13.35}$$

unde u și v reprezintă componentele în fază, respectiv antifază ale polarizării

$$u = \frac{1}{2}(\chi_1 + \chi_2) NE + \frac{1}{2}(\chi_2 - \chi_1) NE(\pm\gamma_{3\omega}/\gamma_\omega) + \frac{1}{2}\chi^{(3)} NE^2 |\delta/\gamma_p| \tag{13.36}$$

$$v = \frac{1}{2}\chi^{(3)}\frac{N|\delta|E}{\gamma_{3\omega}}\frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{E^2}{\gamma_\omega}\right), \tag{13.37}$$

N densitatea de atomi iar χ_1 și χ_2 sînt coeficienți neliniari [122].

Ținînd seama de expresiile lui u și v, precum și de relațiile (13.19) și (13.20) ecuațiile (13.34)–(13.35) devin

$$\frac{\partial E}{\partial z} + \frac{1}{c}\frac{\partial E}{\partial t} = -\frac{2\pi\omega N\chi^{(3)}|\delta|}{c\gamma_p^3}\left[(\Omega_{12} - 2\omega')E^2\frac{\partial E}{\partial t} + E^3\frac{\partial \omega'}{\partial t}\right] \tag{13.38}$$

$$\frac{\partial \omega'}{\partial z} + \frac{1}{c}\frac{\partial \omega'}{\partial t} = -\frac{2\pi\omega N\chi^{(3)}|\delta|}{c\gamma_p^3}\left[(\Omega_{12} - 2\omega')E^2\frac{\partial E}{\partial t} + E^3\frac{\partial \omega'}{\partial t}\right]\times$$

$$\times\frac{\Omega_{12} - 2\omega'}{E}. \tag{13.39}$$

Ecuațiile (13.38–(13.39) au fost integrate numeric pentru un mediu neliniar avînd lungimea de 60 cm, format din vapori de Rb aflați la 180°C [122]. Tranziția rezonantă care implică doi fotoni a fost considerată între nivelul fundamental $5\,S_{1/2}$ și cel excitat $5D_{5/2}$ admițînd numai nivelul $5P_{3/2}$ ca nivel intermediar (fig. 13.4).

În figura 13.5 sînt prezentate: deformarea pulsului obținut în urma tranziției care implică doi fotoni, la trecerea prin mediul neliniar (fig. 13.5, a), automodularea faz $\frac{\partial \Phi}{\partial t}$ (fig. 13.5, b), precum și compensarea de frecvență $\gamma_{3\omega}$

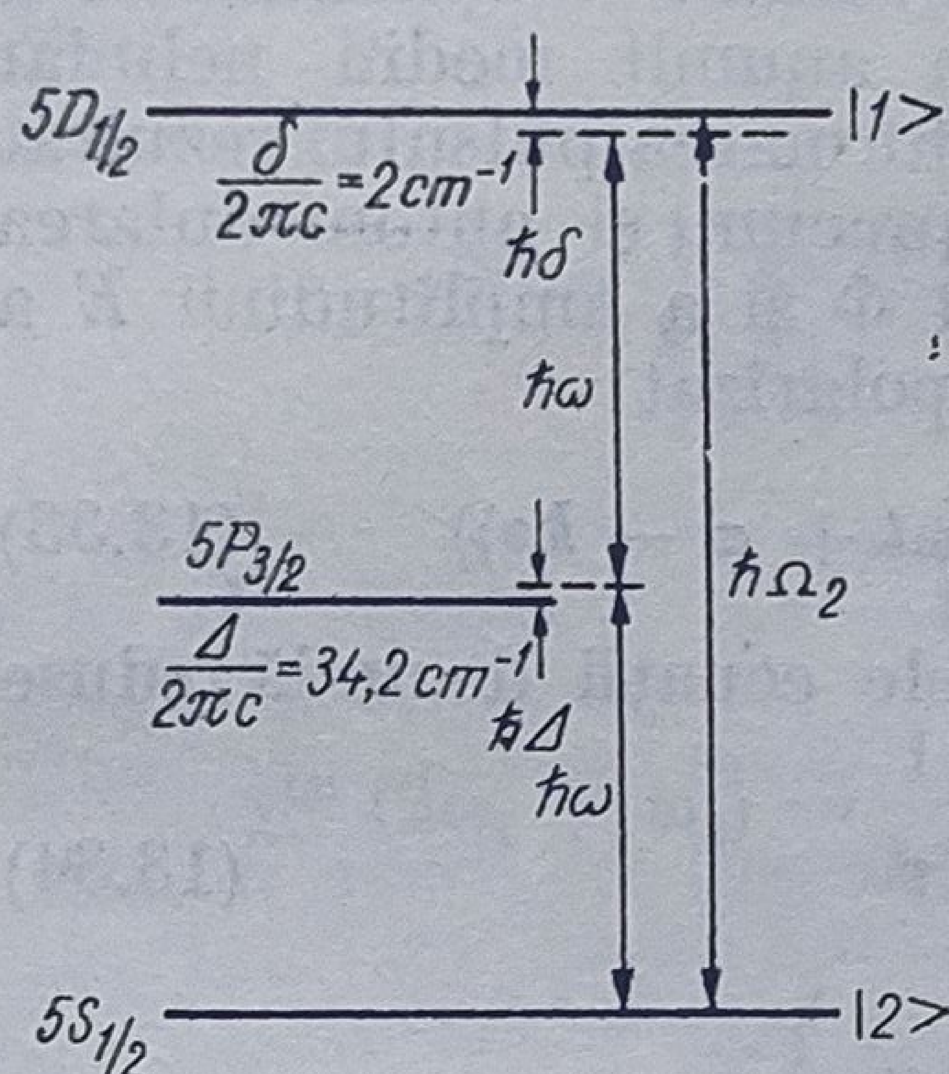


Fig. 13.4

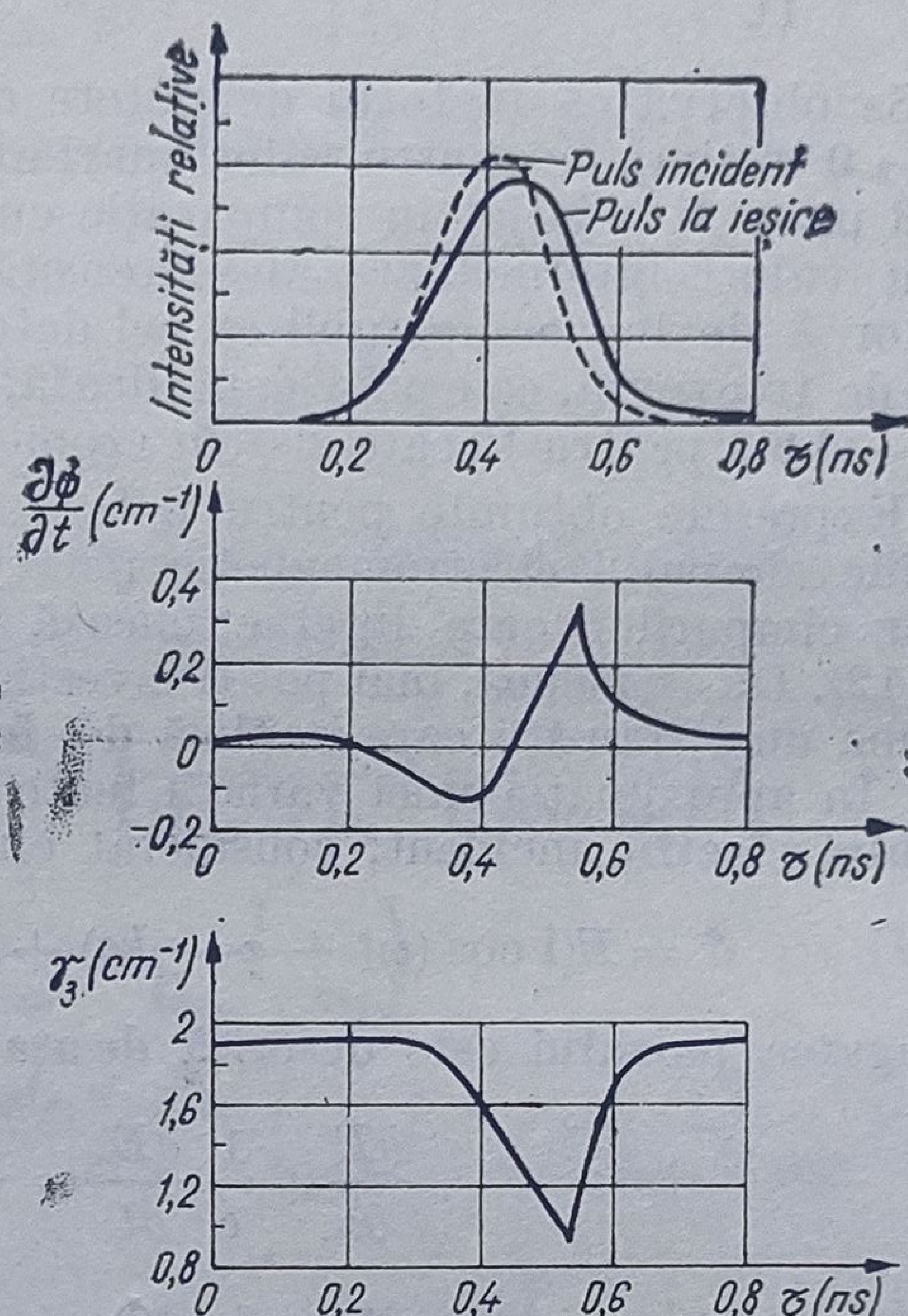


Fig. 13.5

la ieșirea din celula cu Rb (fig. 13.5, c). Integrarea numerică a ecuațiilor reduse ale undelor a fost făcută pentru o putere a radiației de pompaj de 8 MW/cm² cu o lărgime a pulsului de 200 ps și o densitate $N = 2\cdot 10^{14}$ atomi/cm³, rezultatele fiind în bună concordanță cu datele experimentale [141, 122].

Folosindu-se laseri acordabili, eficiențele de conversie la rezonanță pot fi mult mărite și în plus se pot genera radiații în U.V. îndepărtat într-un

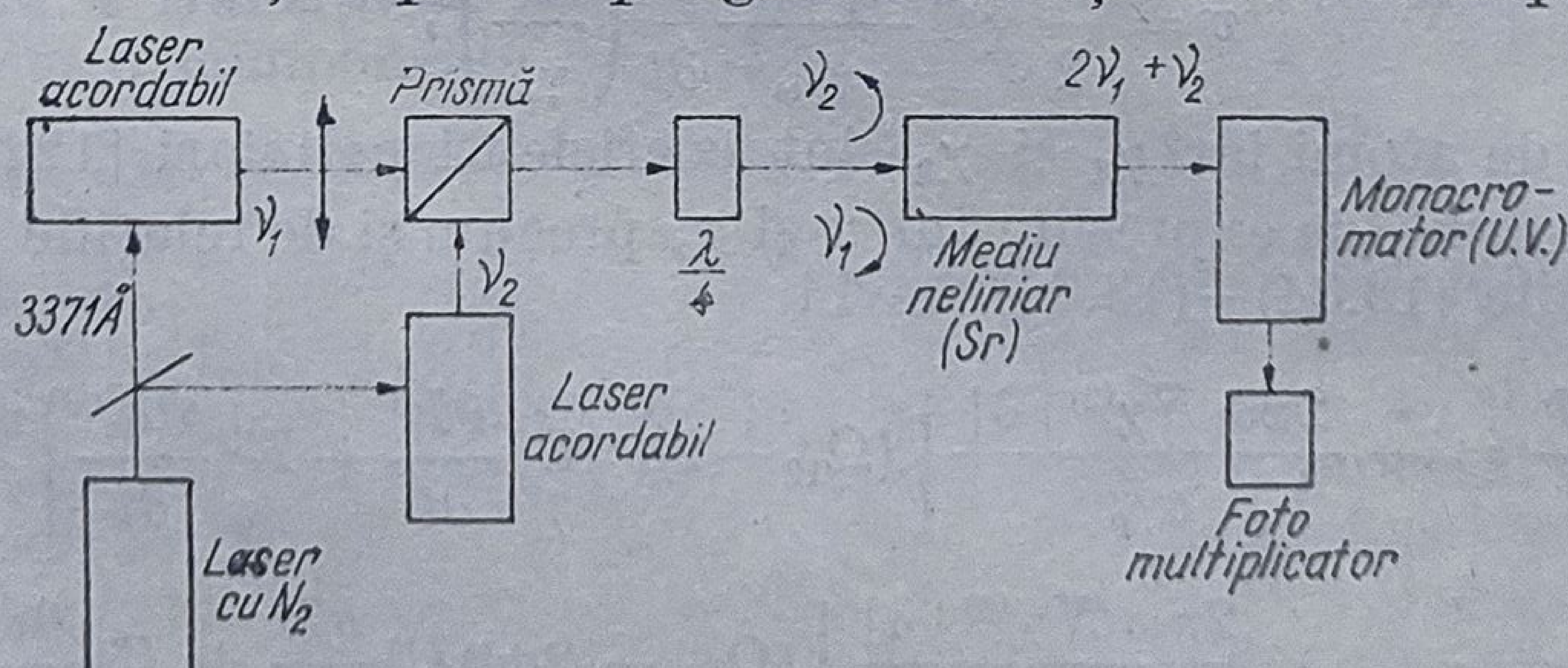


Fig. 13.6

domeniu spectral destul de larg pe baza mixării neliniare a trei unde. Astfel, folosindu-se ca mediu neliniar vapori de Sr, aflați într-o celulă de nichel la presiunea de 100—700 torr și temperatura de 800—900°C, și montajul experimental prezentat în fig. 13.6, au fost obținute radiații coerente

cu banda spectrală foarte îngustă și acordabile în mod continuu în domeniul 1778—1817 Å și 1833—1957 Å [129].

Frecvența fixată ν_1 este jumătate din frecvența de tranziție pentru toarele stări excitate $(5\,p^2)$ $^1S_0$, $^1D_2$, $^3P_2$ și $^3P_0$, iar ν_2 este frecvența laserului acordabil (fig. 13.7). Eficiența de conversie cea mai ridicată a fost obținută în cazul excitării nivelului $5d^1D_2$ în urma absorbției a doi fotoni avînd $\lambda = 5757$ Å, prin intermediul nivelului $5\,p^2$.

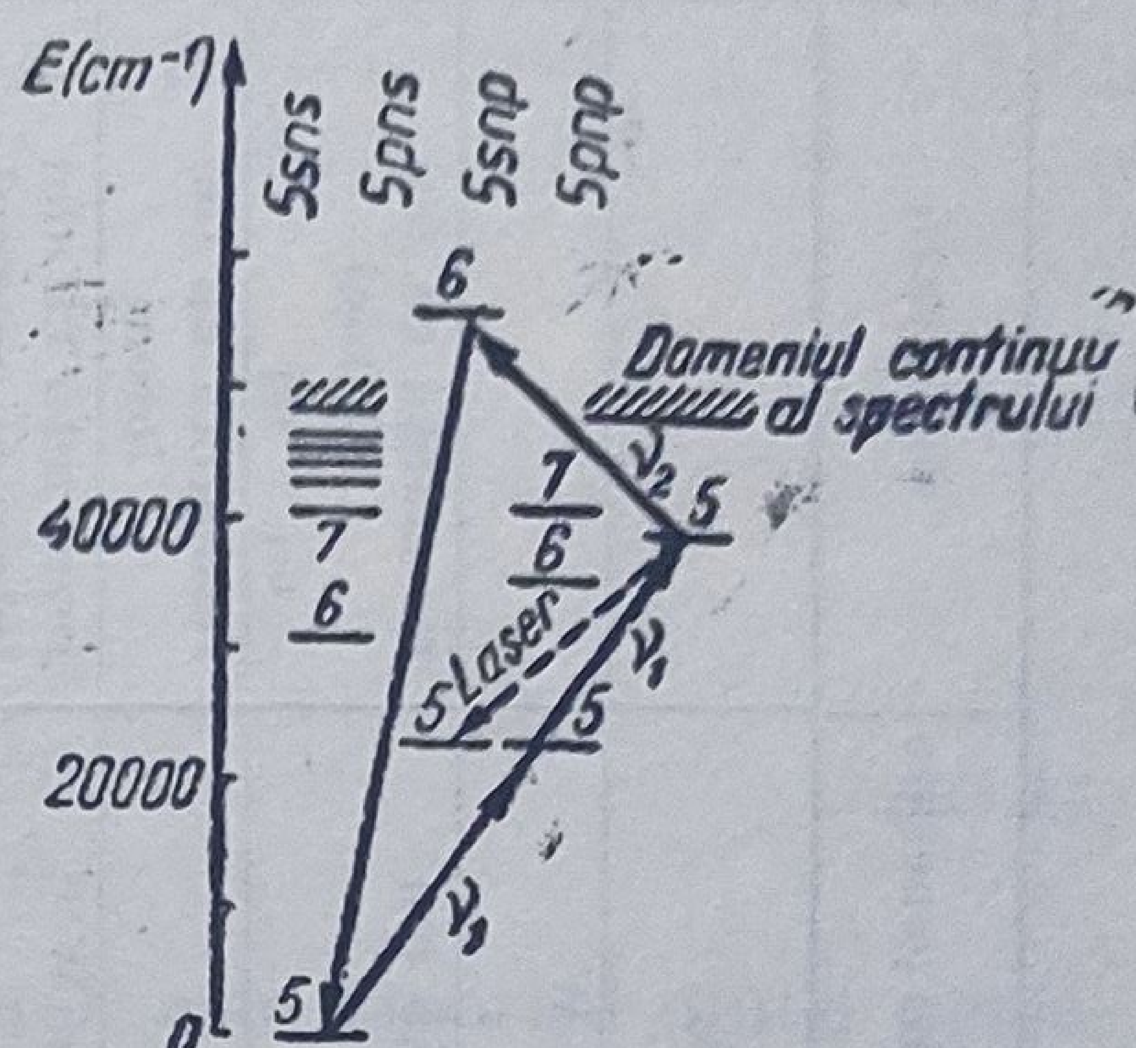


Fig. 13.7

13.3. Rezultate experimentale obținute în procesele de generare parametrică și de armonici optice în medii gazoase

În tabelul 13.1 sînt prezentate cîteva din cele mai importante rezultate experimentale privind ilustrarea principiilor generale ale generării parametrice și de armonici optice, în medii gazoase. Astfel sînt specificate : mediul neliniar în care are loc interacția, care conține un singur component sau sînt folosite și gaze inerte (tampon), procesul neliniar, caracteristicile radiației incidente și respectiv generate (lungimea de undă, puterea, durata pulsului, modul de obținere și eficiența conversiei) și bibliografia.

13.4. Procese care limitează eficiența conversiei

13.4.1. Absorbția radiației de pompaj

Fenomenele de generare parametrică și de armonici optice sînt limitate la puteri mari ale radiației de pompaj de anumite procese cum ar fi de exemplu: absorbția, saturația, ionizarea multifotonică, efectul Stark, neîndeplinirea condiției de adaptare a indicilor, efectul Kerr și împrăștierea Raman, care micșorează eficiențele de conversie. Funcție de parametrii configurației experimentele utilizate la studiul unui anumit proces neliniar se manifestă competiția între procesele mai sus amintite.

Secțiunea eficace de absorbție a unui singur foton $\sigma^{(1)}(\omega)$ este dată de relația [112]

$$\sigma^{(1)}(\omega) = \frac{2e^2\omega^2}{\hbar}\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}}\,|\langle f|\mathbf{d}|g\rangle|^2\,\frac{\Omega_{fg}\Delta\omega}{[\Omega_{fg}-\omega^2]^2+(\omega\Delta\omega)^2} \tag{13.40}$$

unde $\Delta\omega$ este semilărgimea Lorentz definită la jumătate din intensitatea maximă. Relația 13.40 mai poate fi exprimată cu ajutorul tăriei oscilatorului f_{fg} corespunzătoare tranziției $g \to f$ sub forma

$$\sigma^{(1)}(\omega) \simeq 2\,r_e\,f_{fg}\,\frac{\nu^2\,\Delta\nu}{[\nu_{fg}^2-\nu^2]^2} \tag{13.41}$$

Tabelul 13.1

Mediul neliniar	Procesul neliniar	Caracteristicile radiației incidente	Caracteristicile radiației generate	Observații	Bibliografie
Na + Xe	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	$\lambda_1 = 1{,}06$ μm ; 300 MW, 30 ps „mode-locking" NdYAG	$\lambda_3 = 354{,}7$ nm ; 2,7%		[172]
Na + Xe	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	$\lambda_1 = 1{,}06$ μm ; 6 MW Q – switched NdYAG	$\lambda_3 = 354{,}7$ nm ; 230 W		[102]
Na	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	$\lambda_1 = 685{,}6$ nm ; 3 kW $\lambda_2 = 10{,}6$ um – 9,26 μm 5 mW ; CO_2 continuu, acordabil în trepte	$\lambda = 332{,}1$ nm – 330,5 nm	rezonanță cu doi fotoni $\omega_1 + \omega_1$	[140]
Na + Xe	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	$\lambda_1 = 600$ nm, 100 MW, 12 ps, „mode-locking" rodamină 6G	$\lambda_3 = 200$ nm, 8%	rezonanță cu doi fotoni	[102]
Na	$\omega_1 + \omega_2 + \omega_3$	$\lambda_2 = 1{,}06$ μm, Q – switched NdYAG ; $\lambda_1 = 612$ nm, $\lambda_2 = 570$ nm } obținute de la un laser acordabil excitat de armonica a doua NdYAG 1 kW ; 10 ns	$\lambda = 231$ nm, ~ 20 mW	rezonanță cu doi fotoni și acordul indicilor fără gaz tampon	[102] [138]
Na + Xe	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1 + \omega + \omega_1$ $\omega_1 + \omega_1 + 3\omega_1$	$\lambda_1 = 1{,}06$ μm 250 MW 10 ps „mode-locking" Nd $\lambda_1 = 1{,}06$ μm	$\lambda_5 = 212$ nm ; 150 W $\lambda_5 = 212$ nm ; 15 W		[102]
Rb + Xe	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	$\lambda_1 = 1{,}06$ μm ; 100 kW Q – switched ; Nd :YAG	$\lambda_3 = 354{,}7$ nm 0,1 mW		[130]
Rb + Xe	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	$\lambda_1 = 1{,}06$ μm 200 MW „mode-locking" NdYAG 7 ps – 300 ps	$\lambda_3 = 354{,}7$ nm ; 2,8%		[132]
Xe + Ar	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	$\lambda_1 = 354{,}7$ nm 13 MW, 25 ps armonica a treia a unui laser NdYAG („mode-locking")	$\lambda_3 = 118{,}2$ nm 0,1 %		[187], [198]
Ar	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	$\lambda_1 = 170{,}9$ nm, 1 MW laser cu Xe, 10 ns	$\lambda_3 = 57$ nm	rezonanță cu 2 fotoni	[102]
He	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1 + \omega_1 + \omega_1$ $\omega_1 + \omega_1 + \omega_1 + \omega_1 + \omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	$\lambda_1 = 266{,}1$ nm 330 MW, 30 ps armonica a patra a unui laser NdYAG $\lambda_1 = 266{,}1$ nm	$\lambda_5 = 53{,}2$ nm 0,001 % $\lambda_7 = 38$ nm ; 10^{-5} %		[102]
Ar	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	$\lambda_1 = 308$ nm, laser cu XeCl acordabil	$\lambda_3 = 102{,}7$ nm $\lambda_5 = 61{,}6$ nm		[133]

Lărgimea liniei $\Delta\nu$ este determinată de timpul de viață al nivelului excitat τ_c, de presiune $\Delta\nu_p$ și de efecte de autolărgire $\Delta\nu_a$ în condiții normale de temperatură și presiune și se poate calcula cu ajutorul relației

$$\Delta\nu = \Delta\nu_n + \Delta\nu_a \frac{N}{N_0} + \Delta\nu_p R \frac{N}{N_0}. \tag{13.42}$$

În relația (16.42)

$$\Delta\nu_n = \frac{1}{2\pi\tau_c} \tag{13.43}$$

reprezintă lărgimea naturală a liniei

$$\tau_c = 1{,}51 \left(\frac{g_f}{g_g}\right) \frac{\lambda_{fg}}{f_{fg}} \tag{13.44}$$

este timpul de viață al nivelului excitat, iar R este raportul dintre numărul atomilor gazului inert și cel al vaporilor metalici. Efectele de autolărgire sînt proporționale cu concentrația N_0 de vapori metalici

$$\Delta\nu_a = \frac{3\sqrt{6}}{4\pi} \frac{r_e \lambda_{fg} f_{fg}}{g_f} N_0. \tag{13.45}$$

Valorile numerice pentru diferitele lărgimi ale liniilor vaporilor metalelor alcaline și secțiunile eficace de absorbție sînt prezentate în lucrarea [112].

Secțiunea eficace de absorbție a unui foton cu frecvența armonicii a treia $\sigma^{(1)}(3\omega)$ nu depinde de concentrația vaporilor metalici și poate fi calculată luîndu-se în considerare absorbția în domeniul continuu al spectrului. Dacă frecvența armonicii a treia depășește limita de ionizare a atomilor metalelor alcaline, secțiunea eficace de absorbție corespunzătoare $\sigma^{(1)}(3\omega)$ este foarte mică, iar armonica nu este absorbită în mediul neliniar.

Considerînd un profil lorentzian al liniilor spectrale, secțiunea eficace de absorbție a doi fotoni $\sigma^{(2)}(\omega)$ poate fi calculată cu relația [112]

$$\sigma^{(2)}(\omega) = \frac{9{,}194\cdot 10^{-34}}{\pi} \left| \sum_{\alpha_1} \frac{\langle f|\mathbf{d}|\alpha_1\rangle \cdot \langle \alpha_1|\mathbf{d}|g\rangle}{E_{\alpha 1g} - E} \right|^2 \times$$

$$\times \frac{2\omega\, \Omega_{fg}\, \Delta\omega}{[\Omega_{fg}^2 - 4\omega^2]^2 + (2\omega\,\Delta\,\omega)^2} \frac{P}{A} \,(\mathrm{cm}^2) \tag{13.46}$$

unde $\frac{P}{A}$ este densitatea de putere a radiației incidente. Dacă nu se lucrează la rezonanță, absorbția a doi fotoni poate fi neglijată.

Secțiunea eficace de absorbție a n fotoni $\sigma^{(n)}$ poate fi calculată cu ajutorul probabilităților de tranziție w sub forma

$$\sigma^{(n)} = \frac{n\hbar\omega w}{P/A}. \tag{13.47}$$

Absorbția multifotonică joacă un rol important în fenomenul de ionizare, care de asemenea limitează eficiența conversiei, din cauza restricțiilor impuse densității puterii incidente, $\sim 10^{10} - 10^{11}$ W/cm².

De asemenea, reducerea populației stării fundamentale datorită ionizării prin absorbție multifotonică, produce autofocalizarea fasciculului incident, precum și neîndeplinirea condiției de adaptare a indicilor. Un număr mare de fotoelectroni și ioni poate să producă lărgiri și deplasări suplimentare ale nivelelor atomilor neutri, prin intermediul efectului Stark, iar în urma unui proces de ionizare în avalanșă aceștia pot forma o coloană de plasmă care este opacă.

13.4.2. Saturația

În primele experiențe de generare a armonicii a treia [102], [112], [130], puterea radiației incidente utilizată a fost de $\sim 10^5$ W și întrucît nu era îndeplinită condiția de rezonanță, valoarea susceptibilității neliniare de ordinul trei era prea mică pentru a permite obținerea unor eficiențe de conversie ridicate. De asemenea, puterea armonicii a treia obținută experimental era în bună concordanță cu cea calculată teoretic. Mărindu-se puterea radiației incidente [102], s-a observat că puterea armonicii variază tot funcție de cubul puterii incidente pînă cînd aceasta devine de $\sim 1{,}5 \cdot 10^4$W cînd începe să se manifeste fenomenul de saturație (în mixtura Rb Xe). Cele mai mari eficiențe de conversie obținute pînă în prezent în cazul generării armonicii a treia, de la 1,064 μm la 354,7 nm, sînt de 10% [172], eficiența conversiei fiind limitată în parte și de fenomenele de saturație.

Îmbunătățirea eficienței conversiei mai poate fi făcută și prin mărirea susceptibilității în urma absorbției rezonante a doi fotoni. Aceasta se poate realiza cu ajutorul laserilor acordabili care au puteri de ordinul kilowaților. Experimental, s-a observat că la puteri mari, eficiențele de conversie rămîn tot scăzute din cauza fenomenului de saturație.

O altă posibilitate de mărire a eficiențelor de conversie este legată de absorbția rezonantă a doi fotoni la puteri foarte mari ale radiației de pompaj.

Deși mecanismele care guvernează procesele de saturație sînt mai complicate, pentru explicarea acestui fenomen se poate considera că acesta este caracterizat de o intensitate de saturație I_S, definită ca acea intensitate care reduce diferența de populație în urma tranzițiilor de absorbție cu 50%. Această intensitate poate fi calculată cu ajutorul secțiunii eficace de absorbție σ și timpului de relaxare al nivelului superior T_1, sub forma [112]

$$I_S = \frac{\hbar\omega}{2\sigma T_1} \tag{13.48}$$

unde

$$\sigma = \frac{\omega}{c} [\chi^{(1)} (-\omega ; \omega)]. \tag{13.49}$$

Relația (13.48) este valabilă în cazul pulsurilor laser a căror durată este mai mică decît T_1 și cu ajutorul ei se poate calcula fluxul de energie corespunzător saturației $\frac{J_S}{A}$ (energie/arie)

$$\frac{J_S}{A} = I_S \cdot T_1 = \frac{\hbar\omega}{2\sigma}. \tag{13.50}$$

Reducerea populației stării fundamentale micșorează valoarea susceptibilității neliniare de ordinul trei și deci și eficiența conversiei. În plus, variația populației determină neîndeplinirea condițiilor de adaptare a indicilor și focalizarea sau defocalizarea termică a fasciculului incident. În lucrarea [112] sînt prezentate valorile densităților de energie corespunzătoare saturației în mixturi ale vaporilor metalelor alcaline, în cazul generării armonicii a treia de exemplu, 1,064 μm → 0,3547 μm și 0,6943 → 0,2314 μm, care produc efectele mai sus amintite.

13.4.3. Efectul Kerr pătratic

Pe baza modelului prezentat în lucrările [108, 190], dezacordul indicilor datorită efectului Kerr pătratic pentru fundamentală, Δk_1 respectiv armonica a treia, Δk_3, se poate calcula în cazul absorbției cvasirezonante a doi fotoni într-un proces de tipul $\omega_1 + \omega_2 \pm \omega_3$ pentru un sistem ale cărui nivele sînt prezentate în fig. 13.8, cu ajutorul relațiilor

$$\Delta k_1 L = \frac{-\omega_3 \eta^2}{2\hbar^3}\left(\sum_k \frac{d_{0k}\, d_{k2}}{\omega_{k0} - \omega}\right)^2 \cdot \frac{\omega_{20} - 2\omega}{(\omega_{20} - 2\omega)^2 + (\gamma/2)^2}\cdot NIL \qquad (13.51)$$

$$\Delta k_3 L = \frac{-\omega_3 \eta^2}{4\hbar^3}\left(\sum_l \frac{d_{0l}\, d_{l2}}{\omega_{l0} - 3\omega}\right)^2 \cdot \frac{\omega_{20} - 2\omega}{(\omega_{20} - 2\omega)^2 + (\gamma/2)^2}\cdot NIL. \qquad (13.52)$$

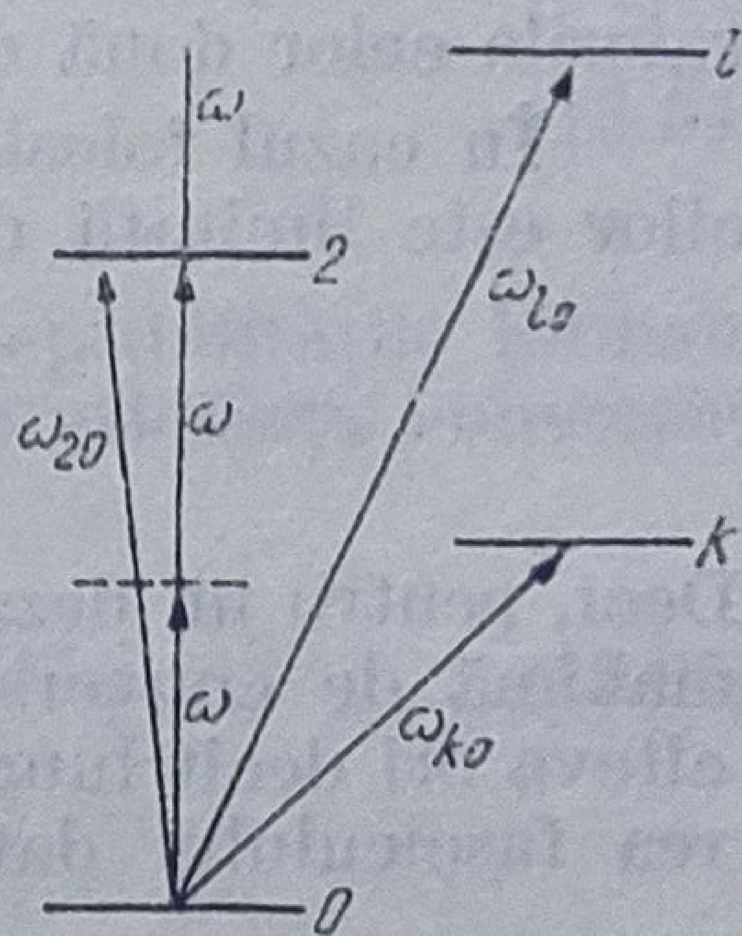


Fig. 13.8

În relațiile (13.51), (13.52) η reprezintă impedanța mediului, γ lărgimea liniei tranziției în care sînt implicați cei doi fotoni, I este intensitatea radiației incidente, iar $\omega_3 = 3\omega$. Eficiența conversiei

$$\varepsilon = \frac{\omega_3^2 \eta^4}{16\hbar^6}\left(\sum_k \frac{d_{0k}\, d_{k2}}{\omega_{k0} - \omega}\right)^2 \cdot \frac{1}{(\omega_{20} - 2\omega)^2 + (\gamma/2)^2} \times$$

$$\times \sum_l \left(\frac{d_{0l}\, d_{l2}}{\omega_{l0} - 3\omega}\right)^2 NIL \cdot \frac{\sin^2(\Delta k L/2)}{\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)^2} \qquad (13.53)$$

poate fi exprimată cu ajutorul dezacordurilor indicilor datorită efectului Kerr pentru fundamentală și armonica a treia, sub forma

$$\varepsilon = \frac{|(\Delta k_1 L)(\Delta k_3 L)|}{2} \cdot \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k_1 L - \Delta k_3 L}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k_1 L - \Delta k_3 L}{2}\right)^2}. \qquad (13.54)$$

Introducînd parametrul

$$R = \frac{\left(\sum_l \frac{d_{0l}\, d_{l2}}{\omega_{l0} - \omega_3}\right)^2}{\left(\sum_k \frac{d_{0k}\, d_{k2}}{\omega_{k0} - \omega}\right)^2}, \tag{13.55}$$

ale cărui valori sînt cuprinse în intervalul ($10^{-4} - 10^4$), eficiența maximă a conversiei este

$$\varepsilon_{max} = R \quad \text{pentru } \Delta k_1 L = \pi, \tag{13.56}$$

$$\varepsilon_{max} = \frac{4}{R} \quad \text{pentru } \Delta k_3 L = \pi. \tag{13.57}$$

Din analiza relațiilor (13.56), (13.57) se observă că atît valorile mari cît și cele mici ale parametrului R determină eficiențe scăzute de conversie. Dacă valorile celor două dezacorduri sînt egale eficiența conversiei este $\varepsilon = 2$.

În cazul folosirii fasciculelor gaussiene, valoarea dezacordului indicilor este limitată de cantitatea

$$\Delta k L < \frac{b}{2L}. \tag{13.58}$$

Deci, pentru un dezacord al indicilor egal cu π, care determină o eficiență maximă de conversie, parametrul confocal b trebuie să fie mai mare de cîteva ori decît lungimea L a mediului neliniar pentru a anula defocalizarea fasciculului datorită efectului Kerr.

13.4.4. Limitarea eficienței conversiei datorită absorbției a doi fotoni și împrăștierii Raman

Din punct de vedere al absorbției a doi fotoni și împrăștierii Raman eficiența conversiei este caracterizată de probabilitatea de absorbție a doi fotoni $w^{(2)}$, coeficientul de atenuare corespunzător celor doi fotoni $a^{(2)}L$ și cîștigul de putere pentru împrăștierea Raman $g_R\ L$. Expresiile lor, calculate pe baza modelului teoretic prezentat în lucrările [102, 190] sînt

$$w^{(2)} = \frac{(\eta^2)\gamma}{4\hbar^4}\left(\sum_k \frac{d_{0k}\, d_{k2}}{\omega_{k0} - \omega}\right)^2 \cdot \frac{1}{(\omega_{20} - 2\omega)^2 + (\gamma/2)^2} \cdot I^2 \tag{13.59}$$

$$a^{(2)}\, L = \frac{\omega\, \eta^2\, \gamma}{2\hbar^3}\left(\sum_k \frac{d_{0k}\, d_{k2}}{\omega_{k0} - \omega}\right)^2 \cdot \frac{1}{(\omega_{20} - 2\omega)^2 + (\gamma/2)^2} \tag{13.60}$$

$$g_R L = \frac{\omega\eta^2}{3\hbar^3\gamma} \cdot \left(\sum_l \frac{d_{0l}\, d_{l2}}{\omega_{l0} - 3\,\omega}\right)^2 \cdot \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega_{20} - 2\omega)^2 + (\gamma/2)^2} \cdot NIL\varepsilon. \tag{13.61}$$

Împrăștierea Raman se poate manifesta fie ca un zgomot care apare la frecvența $\omega_3 - \omega_{20}$, fie prin amplificarea fundamentalei în detrimentul armonicii. Prin combinarea relațiilor (13.59)—(13.61) se poate arăta că atenuarea fundamentalei și împrăștierea Raman la rezonanță impun limitări superi-

oare și inferioare dezacordului $\tilde{d} = \frac{\omega_{20} - 2\omega}{\gamma}$ față de rezonanța cu doi fotoni

$$4\left(\frac{\omega}{\omega_3}\right)\left(\frac{\varepsilon}{R}\right)^{1/2}\frac{1}{(a^{(2)}L)_{max}} < |\tilde{d}| < \frac{3}{2}\left(\frac{\omega_3}{\omega}\right)\frac{(g_R L)_{max}}{(\varepsilon^3 R)^{1/2}}. \quad (13.62)$$

Eficiențele de conversie folosite în relația (13.62) trebuie să fie mai mici decît cele maxime (13.56), (13.57). Astfel, considerînd, de exemplu, un cîștig Raman de 20%, un coeficient de atenuare de 0,25 și $\varepsilon = R = 1$, limitările dezacordului introduse de relația (13.62) devin

$$5 < |\tilde{d}| < 90. \quad (13.63)$$

Neglijînd absorbția a doi factori și alte pierderi, variația amplitudinii fundamentalei în detrimentul armonicii a treia datorită împrăștierii Raman este descrisă de ecuația

$$\frac{dE_3}{dz} = -\beta(1 + i\tilde{d})E_1^3 - \delta|\mathbf{E}_1|^2 E_3 \quad (13.64)$$

unde β și δ sînt cantități reale proporționale cu susceptibilitățile Raman. Cu ajutorul soluției ecuației (13.64) se obține pentru eficiența conversiei următoarea expresie

$$\varepsilon = \left|\frac{\mathbf{E}_3}{\mathbf{E}_1}\right|^2 = \left(\frac{\beta}{\delta}\right)^2 (1 + \tilde{d}^2)(1 - e^{-\delta E_1^2 L})^2. \quad (13.65)$$

Valoarea maximă a eficienței

$$\varepsilon_{max} = \frac{1 + \tilde{d}^2}{R} \quad (13.66)$$

se obține pentru

$$a^{(2)} L \simeq \frac{1}{R}. \quad (13.67)$$

Se observă că împrăștierea Raman mai joacă un rol important și în limitarea eficienței conversiei pentru valori ale parametrului R mai mici sau chiar egale cu unitatea însă pentru valori mari ale acestui parametru aceasta definește prin relația (13.67) valoarea minimă a dezacordului.

13.4.5 Deplasarea nivelelor energetice datorită efectului Stark

Efectul Stark constă în deplasarea nivelelor energetice ale unui sistem atomic (molecular) sub acțiunea unui cîmp electromagnetic exterior, a cărui frecvență este situată în domeniul optic și joacă un rol foarte important atît în spectroscopia de înaltă putere de rezoluție, cît și în procesele de generare parametrică de oscilații optice sau de armonici cînd acestea au loc în urma absorbției a doi fotoni la rezonanță.

Astfel, în cazul unui sistem atomic cu trei nivele energetice în care sînt permise tranzițiile electrice de dipol $1 \to 2$ și $2 \to 3$, prin iradiere

cu un cîmp de frecvență ω astfel aleasă încît $2\omega = \Omega_{31}$ se poate obține o îmbunătățire a eficienței conversiei aromnicii a treia, de exemplu prin mărirea susceptibilității neliniare de ordinul trei, numitorul relației (9.29) devenind foarte mic. Totuși, pentru intensități mari ale radiației de pompaj, nivelele suferă deplasări datorită efectului Stark și condiția de rezonanță nu mai este riguros respectată, reducîndu-se mult valoarea susceptibilității și deci a eficienței conversiei.

Pentru a calcula mărimea deplasării nivelelor se consideră o radiație monocromatică de frecvență ω care la trecerea printr-un mediu suferă atît fenomenul de absorbție cît și schimbarea vitezei de propagare datorită părților imaginară respectiv reală ale indicelui de refracție. Pe baza teoriei electromagnetismului energia W disipată în mediu este dată de relația

$$W = -\langle E.\dot{P}\rangle = \frac{1}{2}\omega \mathrm{Im}\,(E^*_\omega P_\omega). \tag{13.68}$$

Ținînd seama de relația dintre polarizarea de ordinul întîi și cîmpul de frecvență ω

$$P^{(1)}_{(\omega)} = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(-\omega;\ \omega) E_\omega \tag{13.69}$$

și de cea dintre susceptibilitatea corespunzătoare și polarizabilitatea nivelului fundamental

$$\chi^{(1)}(-\omega;\ \omega) = N\alpha''(-\omega;\ \omega)/\varepsilon_0 \tag{13.70}$$

relația (13.68) devine

$$W = \frac{1}{2} N\omega\alpha''(-\omega;\ \omega)\,|\mathbf{E}_\omega|^2 = \frac{N\omega}{\varepsilon_0 c}\alpha''(-\omega;\ \omega) I_\omega. \tag{13.71}$$

Pe de altă parte, considerînd că frecvența radiației de pompaj diferă mult de cea corespunzătoare liniilor de absorbție, indicele de refracție poate fi calculat cu o formulă aproximativă

$$n_\omega = (1 + \chi^{(1)})^{1/2} \simeq 1 + \frac{\chi^{(1)}}{2} \tag{13.72}$$

astfel încît

$$n_\omega - 1 \simeq N\alpha'(-\omega;\ \omega)/2\varepsilon_0. \tag{13.73}$$

Deci densitatea de energie a radiației monocromatice într-un mediu avînd indicele de refracție n_ω crește față de valoarea corespunzătoare în vid $\varepsilon_0|\mathbf{E}_\omega|^2/2$ cu cantitatea

$$\Delta E_g = -\frac{1}{4} N\alpha'(-\omega;\ \omega)\,|\mathbf{E}_\omega|^2. \tag{13.74}$$

Pentru respectarea legii conservării energiei în cazul interacției cîmp-sistem atomic, trebuie să existe o trecere continuă și reversibilă a energiei de la mediu la cîmp datorită variației adiabatice a energiei stării fundamentale. Luînd în considerare formula polarizabilității

$$\alpha_{mn}(-\omega;\ \omega) = \frac{1}{\hbar}\sum_i \left(\frac{d_{mi}\, d_{in}}{\Omega_{in} - \omega} + \frac{d_{mi}\, d_{in}}{\Omega_{in} + \omega}\right), \tag{13.75}$$

deplasarea energetică $\hbar\Delta\Omega_n$ a nivelului n indusă de cîmpul liniar polarizat $E = E_0 \cos \omega t$ este

$$\hbar\Delta\Omega_n = -\frac{1}{4\hbar}\sum_m \left(\frac{1}{\Omega_{mn}-\omega}+\frac{1}{\Omega_{mn}+\omega}\right)|\mathbf{d}_{mn}|^2 E_0^2. \qquad (13.76)$$

Pentru deducerea relației (13.76) s-a considerat că dezacordul frecvenței față de rezonanță este mult mai mare decît lărgimea naturală a

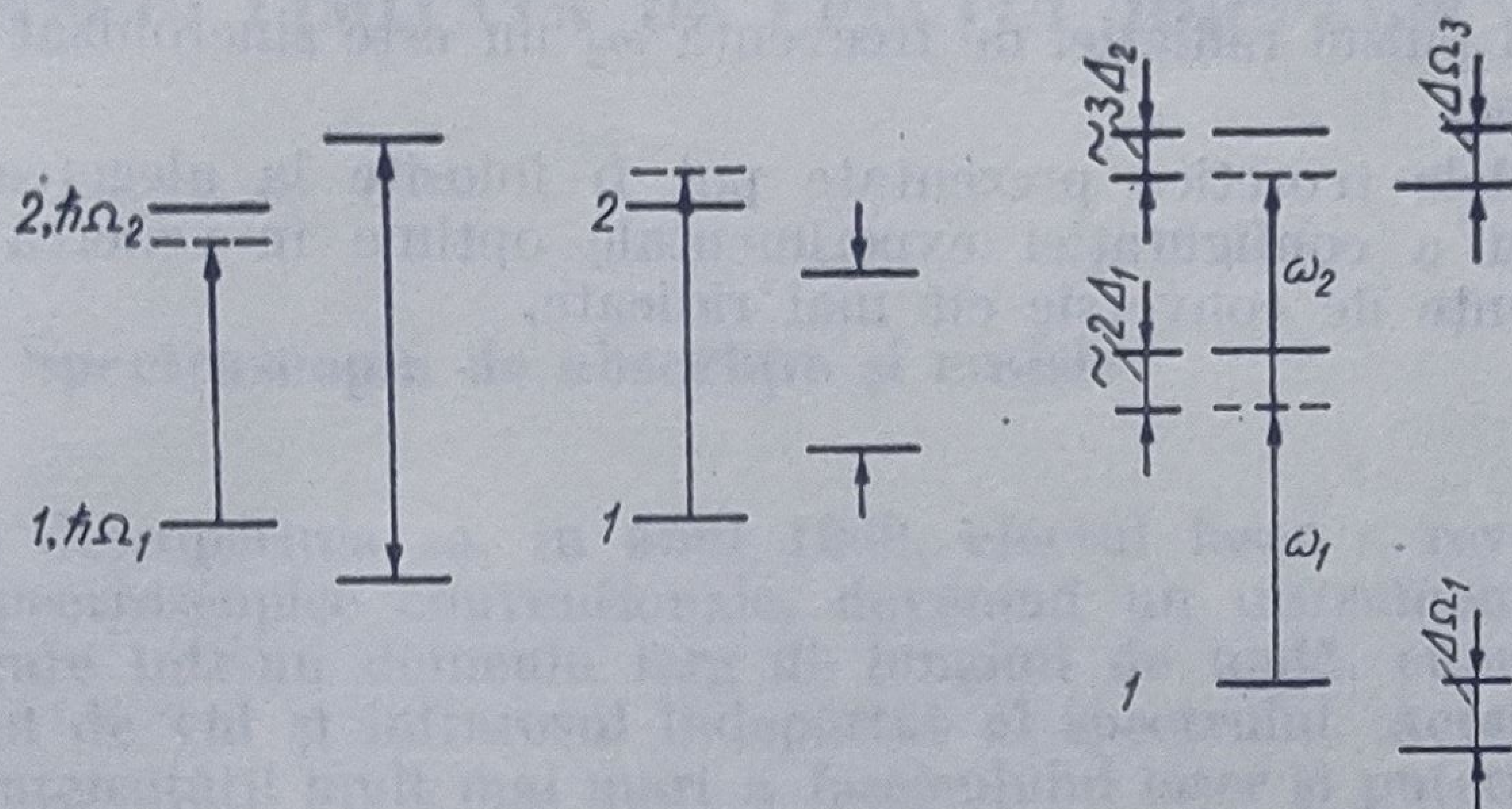


Fig. 13.9

nivelelor, astfel că pierderile pot fi neglijate și în plus nu există confuzii în ceea ce privește semnul deplasării frecvenței

$$\Omega_{mn} = \frac{E_m - E_n}{\hbar}. \qquad (13.77)$$

În cazul unui sistem cu două nivele ale căror energii neperturbate sînt $\hbar\Omega_2$ și $\hbar\Omega_1$ (fig. 13.9), relația (13.76) devine

$$\hbar\,\Delta\Omega_2 = -\hbar\,\Delta\Omega_1 \simeq |\mathbf{d}_{12}|^2 \frac{E_0^2}{4\hbar}(\Omega_{21}-\omega). \qquad (13.78)$$

Dacă frecvența radiației de pompaj ω este mai mică decît frecvența tranziției neperturbate Ω_{21}, nivelul inferior 1 și cel superior 2 se deplasează în jos, respectiv în sus, cu aceeași cantitate dată de relația (13.78), iar dacă $\omega > \Omega_{21}$ situația se inversează.

Calculele efectuate pentru tranziția $6s-7s$ în cesiu, de exemplu, indică o deplasare a nivelelor față de rezonanță de 0,5 cm^{-1} pînă la 20 cm^{-1} pentru densități de putere ale radiației de pompaj de 10^5 W/cm^2.

Într-un sistem atomic cu trei nivele care este iradiat cu două cîmpuri ale căror frecvențe sînt ω_1 și ω_2, absorbția rezonantă a doi fotoni este dependentă și de deplasarea nivelelor, rata tranzițiilor care implică cei doi fotoni $w^{(2)}$ fiind proporțională cu produsul deplasărilor [134].

$$w^2(1 \to 3) \sim -\Delta\Omega_1\,\Delta\Omega_3. \qquad (13.79)$$

De fapt, fenomenele de deplasare a nivelelor, de absorbție rezonantă a doi fotoni și lărgirea nivelelor datorită puterii radiației incidente trebuie tratate împreună și nu separat. Considerînd o astfel de tratare teoretică [135] s-a putut explica de ce eficiența maximă de conversie obținută experimental în cazul procesului [142]

$$\omega_1 + \omega_1 + \omega_2 \to \omega_3 \tag{13.80}$$

care are loc prin absorbție rezonantă a doi fotoni, are o valoare maximă atunci cînd pulsul radiației de frecvență ω_2 nu este sincronizat cu cel de frecvență ω_1.

Modelele teoretice prezentate pot fi folosite la alegerea mediilor neliniare și a configurației experimentale optime în vederea obținerii unor eficiențe de conversie cît mai ridicate.

IV. SPECTROSCOPIE ATOMICĂ ȘI MOLECULARĂ NELINIARĂ

14. SPECTROSCOPIE ATOMICĂ ȘI MOLECULARĂ CU LASERI LIMITATĂ DE EFECTUL DOPPLER

14.1. Spectroscopia de absorbție și emisie

După descoperirea sa, în anul 1960, efectul laser a revoluționat tehnicile spectroscopice convenționale, devenind un instrument riguros de investigare într-un domeniu larg de lungimi de undă, cuprins între ultravioletul de vid și infraroșul îndepărtat al spectrului. Acest fapt se datorește intensității mult mai mari a fasciculului laser și puterii sale de rezoluție spectrală, respectiv temporală, superioare în comparație cu tehnicile convenționale.

Astfel, în timp ce o lampă cu vapori de mercur la presiune înaltă emite o putere de ordinul waților într-un unghi solid de 1 sterradian, un laser cu solid dielectric (YAG) are în regim de impulsuri o putere de 10^{13} wați, iar un laser ionic (cu argon ionizat) în regim continuu atinge o putere de 10^3 wați.

Pentru un spectrometru cu rețea, de exemplu, puterea de rezoluție este determinată de dimensiunea fantei (zgîrieturii) rețelei. Dacă se folosește un selector cu înaltă putere de rezoluție (etalon Fabry-Pérot, interferometru Michelson) puterea de rezoluție este determinată de lărgimea liniilor spectrale care se poate datora efectului Doppler sau ciocnirilor.

Puterea de rezoluție temporală este determinată de durata pulsurilor emise de sursa de excitare. Astfel, folosindu-se tehnica de funcționare în regim de sincronizare a modurilor („mode-locking'') s-au obținut pulsuri laser cu durate de ordinul 10^{-12}—10^{-13} s, care sînt cu cîteva ordine de mărime mai mici decît durata pulsurilor emise de sursele convenționale, fapt care permite o mai bună rezolvare temporală a proceselor radiative caracteristice atomilor și moleculelor.

Divergența mică a fasciculului laser este folosită în tehnica reflexiilor multiple pentru a mări absorbția. Cu ajutorul unui laser acordabil, prin efect Zeeman, se poate baleia întregul profil al liniei de absorbție, obținîndu-se astfel o înaltă sensibilitate la concentrații mici ale probei.

Folosirea acestor tehnici a permis investigarea spectrelor de rotație-vibrație ale moleculelor [103] iar din studiul radicalilor liberi OH, CH, HO_2 și HCO s-au obținut informații privind cinetica reacțiilor [103].

În cazul absorbției mai puțin intense se folosesc laseri cu coloranți avînd bandă largă [173]. Prin așezarea cuvei în cavitatea laser, absorbția observată în spectrul laserului este cu cîteva ordine de mărime mai intensă decît în cazul unei singure treceri [105]. Creșterea sensibilității nu se datorește atît numărului mare de treceri, cît numărului mare de moduri excitate în laser.

Întrucît pe baza rezultatelor teoretice și experimentale s-a obținut o dependență liniară a absorbției pentru probe plasate atît în interiorul, cît și în afara cavității, laserii cu coloranți pot fi utilizați pentru analiza cantitativă [103]. Astfel au fost studiate în stare de vapori elemente ca : Na, Cs, I_2 și altele [103].

Laserii cu coloranți prezintă o strălucire spectrală puternică fapt care a fost folosit la popularea nivelelor excitate și selectarea acestora în vederea detectării unor noi termeni spectrali, superiori, și a nivelelor de autoionizare. Astfel, s-au obținut spectre de absorbție în care au fost implicate nivele care nu puteau fi populate direct din starea fundamentală, iar pentru punerea în evidență a nivelelor de autoionizare s-a evitat detecția în regiunea ultravioletului de vid, unde apar dificultăți experimentale, întrucît absorbția s-a făcut de pe nivele superioare celui fundamental.

În cazul Ba [103] s-au evidențiat serii de forma : $6s6p^1P_1 - 6snd^1D_2$, pentru valori ale numărului cuantic principal $n = 41$, iar nivelul de autoionizare la rezonanță corespunde tranziției $3s3p^1P_1 - 3p^{2\,1}S_0$. [119].

Spectrele de absorbție obținute cu ajutorul unor laseri acordabili, au fost folosite la analiza solvenților din atmosferă, cum ar fi, de exemplu, gaze ca : CO, CO_2, HF și N_2O, întrucît liniile lor de absorbție coincid cu cele ale unor laseri din domeniul infraroșu („metoda absorbției diferențiale"). Metoda amintită se bazează pe absorbția selectivă a radiației retroimprăștiate prin difuzia Mie și Rayleigh [119].

Utilizarea în spectroscopia de emisie stimulată a laserilor de putere, cu frecvența stabilizată, a condus la evidențierea de noi nivele și despicări ale acestora. S-au putut determina astfel frecvențele izotopilor $^{12}C^{18}O_2$, $^{13}C^{16}O_2$ și $^{13}C^{18}O_2$ prin comparație cu izotopul $^{12}C^{16}O_2$ și cele ale izotopilor ^{136}Xe, ^{128}Xe, fie prin măsurări interferometrice, fie prin măsurători prin heterodinare optică, rezultatele fiind folosite la poziționarea mai precisă a centrelor benzilor și la calculul constantelor de rotație [119].

Studiind liniile laser din domeniul infraroșu, emise de gazele nobile, s-au obținut valorile probabilităților de tranziție și s-a confirmat valabilitatea unor aproximații introduse la calculul diferiților termeni spectrali [119].

Determinarea unor constante moleculare, a probabilităților de tranziție, a secțiunilor eficace de ciocnire în stări excitate și a curbelor de potențial se poate face din spectrele de fluorescență obținute, fie cu ajutorul unor laseri ale căror frecvențe coincid întîmplător cu frecvențele tranzițiilor electronice ale moleculei sau cu ajutorul unor laseri acordabili [119].

Spectrul de fluorescență indusă prin ciocniri dă informații detaliate, în ceea ce privește procesele de ciocnire neelastică a moleculei aflată în stare excitată [119].

Fluorescența indusă de laseri și îndeosebi de cei acordabili poate fi folosită și la determinări analitice. Astfel, folosindu-se un laser cu ioni de argon, cu $\lambda = 4880$ Å, s-au putut determina prezența NO_2 cu concentrația de 3 ppb [119].

14.2. Studiul proceselor de relaxare ale moleculelor și măsurarea timpilor de viață

Cunoașterea mecanismelor de redistribuire a energiei între diferite grade de libertate de vibrație, rotație și translație, joacă un rol important în cinetica reacțiilor chimice uzuale cît și în a celor induse de laseri, în înțelegerea proceselor care au loc în laserii chimici și moleculari și în obținerea de informații privind dinamica proceselor de ciocnire între molecule.

Pentru a studia procesele care guvernează relaxarea moleculelor de pe diferite nivele de vibrație, acestea sînt excitate cu ajutorul unui laser care are o putere de ordinul kilowaților, iar durata pulsului de ordinul microsecundelor. În urma ciocnirilor, are loc o redistribuire a moleculelor pe diferite nivele de rotație ale stărilor excitate de vibrație și deci populația de pe aceste nivele poate fi studiată cu ajutorul fluorescenței din domeniul infraroșu, obținută în urma dezexcitării moleculelor [119].

Informații legate de populația diferitelor nivele de vibrație excitate mai pot fi obținute și din spectrul de absorbție, caz în care moleculele sînt excitate cu ajutorul unei radiații laser cu frecvență apropiată de frecvența vibrațiilor moleculelor, încît intensitatea absorbției este proporțională cu diferența de populație dintre nivelele implicate [119].

Studiul proceselor de relaxare mai poate fi făcut prin spectroscopie Raman [119] cu ajutorul laserilor ale căror linii sînt acordate exact pe frecvențele de vibrație ale moleculelor, cum ar fi, de exemplu: CO_2, N_2O, HCl, HF, sau cu ajutorul unor laseri acordabili.

Determinarea exactă a timpilor de viață ai nivelelor excitate este folosită pentru verificarea calculelor teoretice privind partea radială a funcțiilor de undă, pentru determinarea tăriilor oscilatorilor elementelor de tranziție și pămînturilor rare și cu ajutorul acestora, a abundențelor elementelor în atmosfera solară și a stelelor [119].

Întrucît s-a constatat că nivelele de vibrație care aparțin aceleiași stări electronice au timpi de viață aproximativ egali [119] cunoașterea lor este folosită la clasificarea spectrelor moleculare complexe.

Există mai multe metode de determinare a timpilor de viață. Prin excitarea unui sistem atomic sau molecular cu o radiație laser modulată, cu frecvența ω, la dezexcitare, intensitatea fluorescenței este, de asemenea, modulată la aceeași frecvență, dar faza este deplasată cu cantitatea $\Delta\varphi$. Această metodă, numită metoda deplasării fazei permite determinarea timpului de viață al nivelului excitat din relația : $-\omega\tau = \mathrm{tg}\Delta\varphi$[119]. S-a constatat că dacă se folosește un laser acordabil [119], deplasarea fazei depinde și de intensitatea radiației incidente și numai pentru valori mici ale intensității este valabilă relația

$$-2\omega\tau = \mathrm{tg}\,\Delta\varphi.$$

În cazul metodei excitării prin pulsuri scurte, se folosește un laser care este modulat prin metode electro-optice sau acusto-optice, pulsurile obținute fiind mai scurte decît timpul de viață al nivelului electronic excitat. Numărul de fotoni se determină din spectrul de fluorescență obținut la dezexcitare [119].

Timpii de viață mai pot fi măsurați și prin metoda intersecției de nivele (efect Hanle) [119], prin aplicarea unei excitații laser selective asupra unui fascicul de ioni rapizi și prin metoda excitării în treptă a nivelelor energetice mai înalte [119].

14.3. Studiul proceselor de ciocnire

În urma proceselor de ciocnire neelastică pe care le suferă atomii sau moleculele unui gaz, au loc deplasări și lărgiri ale liniilor spectrale (funcție de presiunea gazului), dezexcitarea stărilor excitate și fluorescența indusă.

Pe baza fluorescenței induse de laser a fost studiată dependența timpului de viață al stărilor excietate, de presiunea gazului pentru diferite molecule și a fost măsurată probabilitatea emisiilor spontane [119]. Folosind tehnica fasciculelor intersectate pentru particule ușoare excitate cu ajutorul laserilor a fost studiată influența ciocnirilor asupra interacției spin-orbită [119]. Experiențele au fost făcute cu fascicule de electroni care au fost împrăștiați de atomii de Na excitați cu ajutorul unui laser acordabil în regim continuu, pentru tranziția

$$3^2S_{1/2}, F = 2 \rightarrow 3^2P_{3/2}, F = 3.$$

Ciocnirile neelastice care au loc în timpul descărcărilor în gaze mai pot fi studiate și cu ajutorul spectrului de fluorescență indusă prin ciocniri. Atomii sau moleculele excitate pe diferite nivele, cu ajutorul unei radiații laser trec în urma tranzițiilor neradiative induse de ciocnirile neelastice, pe nivele inferioare apropiate, de unde emit linii de fluorescență care conțin informații privind procesele de ciocnire. Folosind tehnica fluorescenței se pot studia și fenomenele de ciocnire, induse de radiația laser, într-un sistem mixt format din atomi de Sr și Ca [197]. Astfel, sub acțiunea unei radiații de pompaj cu $\lambda = 4607$ Å atomii de Sr sînt stocați pe nivelul metastabil $5s5p^1P^0$ (fig. 14.1). În urma proceselor de ciocnire „virtuală", datorate interacțiilor dipol-dipol și de absorbție a unei radiații de transfer cu $\lambda = 4977$ Å, atomii de Ca sînt excitați pe nivelul $(4p^2\,{}^1S)$, iar atomii de Sr trec pe nivelul fundamental $(5s^2\,{}^1S_0)$. Înregistrîndu-se spectrul de fluorescență corespunzător radiației cu $\lambda = 5513$ Å, funcție de lungimea de undă a radiației de transfer s-au determinat secțiunile eficace ale ciocnirilor induse de radiația laser, verificîndu-se astfel valabilitatea calculelor teoretice.

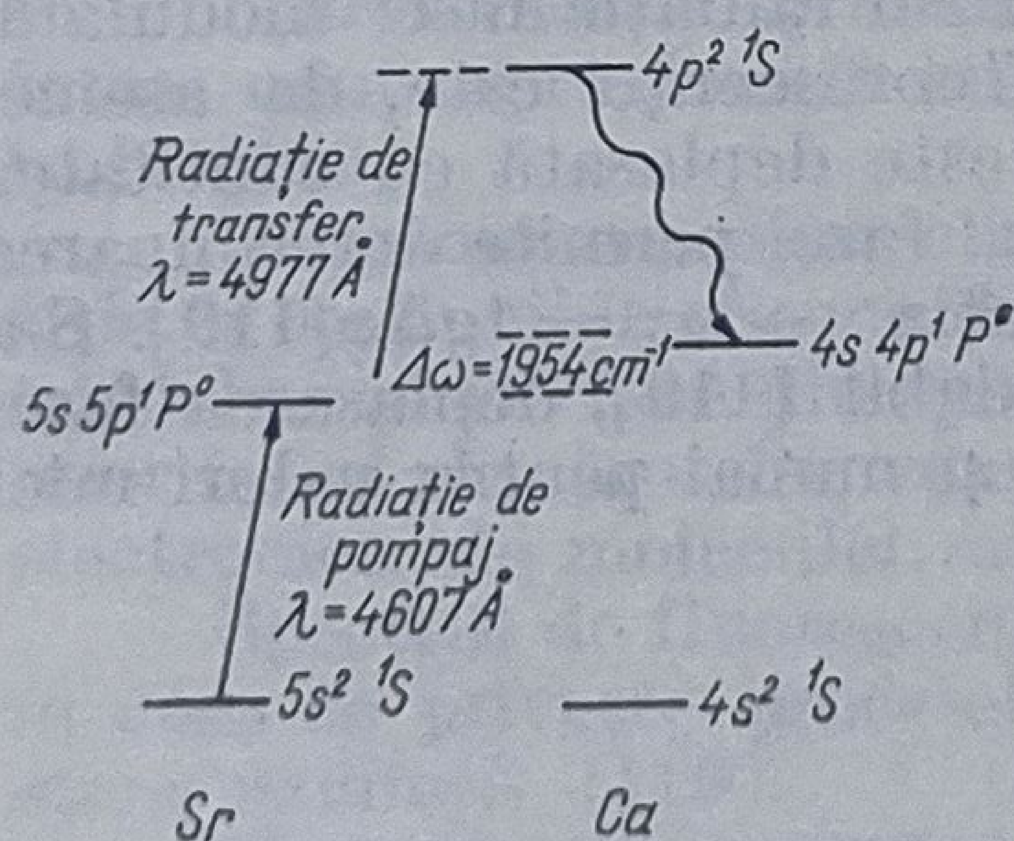


Fig. 14.1

De asemenea, în afara proceselor de ciocnire dipol-dipol induse de radiaţia laser, spectrele de fluorescenţă obţinute în anumite condiţii experimentale, evidenţiază rolul ciocnirilor şi în alte procese induse de laser : procese de interacţie dipol-cuadrupol, cu transfer de sarcină [197].

În ultimul timp sînt studiate atît teoretic cît şi experimental, efectele ciocnirilor asupra fluorescenţei la rezonanţă [197] şi asupra coerenţei [159].

14.4. Studiul proceselor de fotoionizare

Procesele de fotoionizare joacă un rol foarte important în mai multe domenii ca : descărcările în gaze, studiul interacţiilor dintre radiaţiile U.V. emise de soare şi ionosferă, spectroscopia atomică, verificarea modelelor teoretice şi altele.

Fotoionizarea atomilor aflaţi iniţial în starea fundamentală se obţine numai cu ajutorul radiaţiilor din domeniul ultraviolet sau ultravioletul îndepărtat al spectrului şi poate fi făcută fie prin excitare directă, fie prin excitare în treaptă.

Astfel, folosind procedeul de excitare în treaptă cu ajutorul unui laser acordabil, a fost studiată fotoionizarea atomilor de bariu. Radiaţia laser produce o puternică populare a nivelului $6s6p^3P$, iar de aici atomii de bariu trec prin tranziţii neradiative pe nivelul metastabil $6s5d^3D$, obţinîndu-se astfel 10^{16}atomi/cm^3 uniform distribuiţi pe cele trei subnivele ale nivelului excitat ^3D. Din spectrul de absorbţie corespunzător tranziţiei atomilor de bariu din starea excitată $6s5d^3D$ în starea $6snf^3F$ şi în starea ionizată s-au identificat serii corespunzătoare numărului cuantic principal $n = 32$ şi s-a determinat secţiunea eficace absolută de fotoionizare pentru $\lambda = 3030$ Å.

Atomii în stare metastabilă mai pot fi obţinuţi şi prin ciocnirea lor cu electronii şi apoi iradierea cu ajutorul unui laser acordabil, ionii astfel obţinuţi fiind detectaţi cu ajutorul unui multiplicator de particule. Folosind acest procedeu au fost studiaţi atomii de He, Ar şi Kr.

Folosindu-se fotoionizarea atomilor de bariu excitaţi pe nivelul metastabil $^1D_2$ într-o cavitate laser cu He-Cd ($\lambda = 3250$ Å), s-au obţinut fotoelectroni caracterizaţi printr-o înaltă monocromaticitate (10^{-12}—10^{-13} s), care pot fi folosiţi, de exemplu, la investigarea rezonanţelor rezultate în urma ciocnirilor elastice dintre electroni şi atomi.

15. SPECTROSCOPIE OPTICĂ LINIARĂ FĂRĂ LĂRGIRE DOPPLER

15.1. Lărgirea liniilor spectrale prin efect Doppler

Întrucît cea mai mare parte a informațiilor privind structura materiei la nivel molecular și atomic, se obțin prin metodele spectroscopiei optice, un rol determinant în perfecționarea acestor metode îl joacă îngustarea liniilor spectrale de emisie și absorbție.

Lărgirea liniilor spectrale prin efect Doppler a constituit o piedică serioasă în măsurarea structurii hiperfine a tranzițiilor optice. Liniile de rezonanță ale Na, corespunzătoare tranzițiilor $3^2S_{1/2} \rightarrow 3^2P_{3/2}$ cu $\lambda = 5890$ Å și $3^2S_{1/2} \rightarrow 3^2P_{1/2}$ cu $\lambda = 5896$ Å sînt constituite de fapt din dubleți, datorită despicării hiperfine a nivelului fundamental. Despicarea avînd o valoare de aproximativ 0,02 Å, este mascată de lărgirea Doppler la temperaturi de 500 K. Structura hiperfină a liniilor spectrale de Na poate fi pusă în evidență folosind metoda fasciculelor atomice.

Cea mai importantă cauză care conduce la lărgirea liniilor spectrale se datorește interacțiilor dintre moleculele, respectiv atomii gazului. Acest neajuns poate fi înlăturat studiind liniile spectrale emise de gaze la presiuni scăzute.

O altă cauză, este legată de lărgirea termică a liniilor spectrale, datorită efectului Doppler. Un atom (sau moleculă) în repaus, emite sau absoarbe o radiație, la tranziția între două nivele cu energia E_1 și E_2, avînd frecvența

$$\nu_{21} = \nu_0 = \frac{E_2 - E_1}{h}. \tag{15.1}$$

Datorită agitației termice frecvența liniei spectrale a atomului (moleculei) este deplasată cu o valoare care depinde de proiecția vitezei particulei $\mathbf{v}$ pe direcția de observare $\mathbf{n}$, adică

$$\nu = \nu_0 \left(1 - \frac{\mathbf{v}}{c}\,\mathbf{n}\right). \tag{15.2}$$

Întrucît la echilibru termic toate direcțiile după care se poate mișca particula sînt echiprobabile, deplasarea liniei spectrale datorită efectului

Doppler este diferită pentru fiecare particulă. Proiecţia vitezei particulei de masă m_0 după orice direcţie ($v = \mathbf{nv}$) este dată de o distribuţie Maxwell

$$f(v) = \frac{1}{\sqrt{\pi}u} e^{[-(v/u)^2]} \quad \text{unde} \quad u = \sqrt{\frac{2kT}{m_0}}, \tag{15.3}$$

care are simetrie identică cu cea a curbei lui Gauss. Deci, linia spectrală (fig. 15.1, a) pentru un ansamblu de particule în mişcare are un profil gaussian avînd centrul fixat la frecvenţa ν_0 corespunzător tranziţiei între cele două nivele ca în fig. (15.1,b).

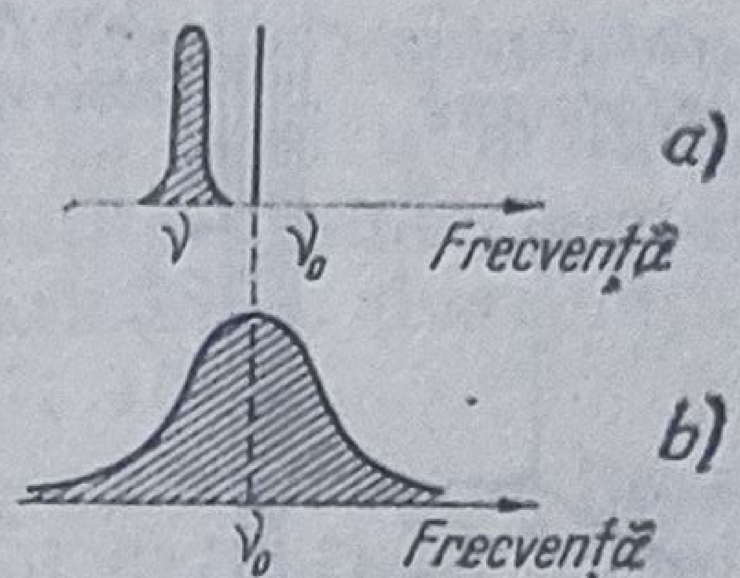


Fig. 15.1

Dacă lărgirea prin efect Doppler este independentă de lărgirea datorită ciocnirilor, forma liniei spectrale pentru un ansamblu de particule în mişcare $S(\omega)$ este definită de convoluţia liniei spectrale corespunzătoare unei particule, $a_v(\omega) = a\left(\omega - \frac{\mathbf{nv}}{c}\omega\right)$ care are o distribuţie Doppler modificată cu o cantitate care depinde de proiecţia vitezei particulei $\mathbf{v}$ pe direcţia de observare $\mathbf{n}$

$$S(\omega) = \int a_v(\omega) f(\mathbf{v}) \, d(\mathbf{vn}). \tag{15.4}$$

În cazul unei distribuţii maxwelliene a particulelor după viteze (15.3) semilărgimea liniei spectrale datorită efectului Doppler ω_D este dată de relaţia

$$\Delta\omega_D = \frac{2\omega_0}{c}\left(2 \ln 2 \frac{kT}{m_0}\right)^{1/2} = 7{,}163 \cdot 10^{-7} \sqrt{\frac{T}{A}} \, \omega_0 \tag{15.5}$$

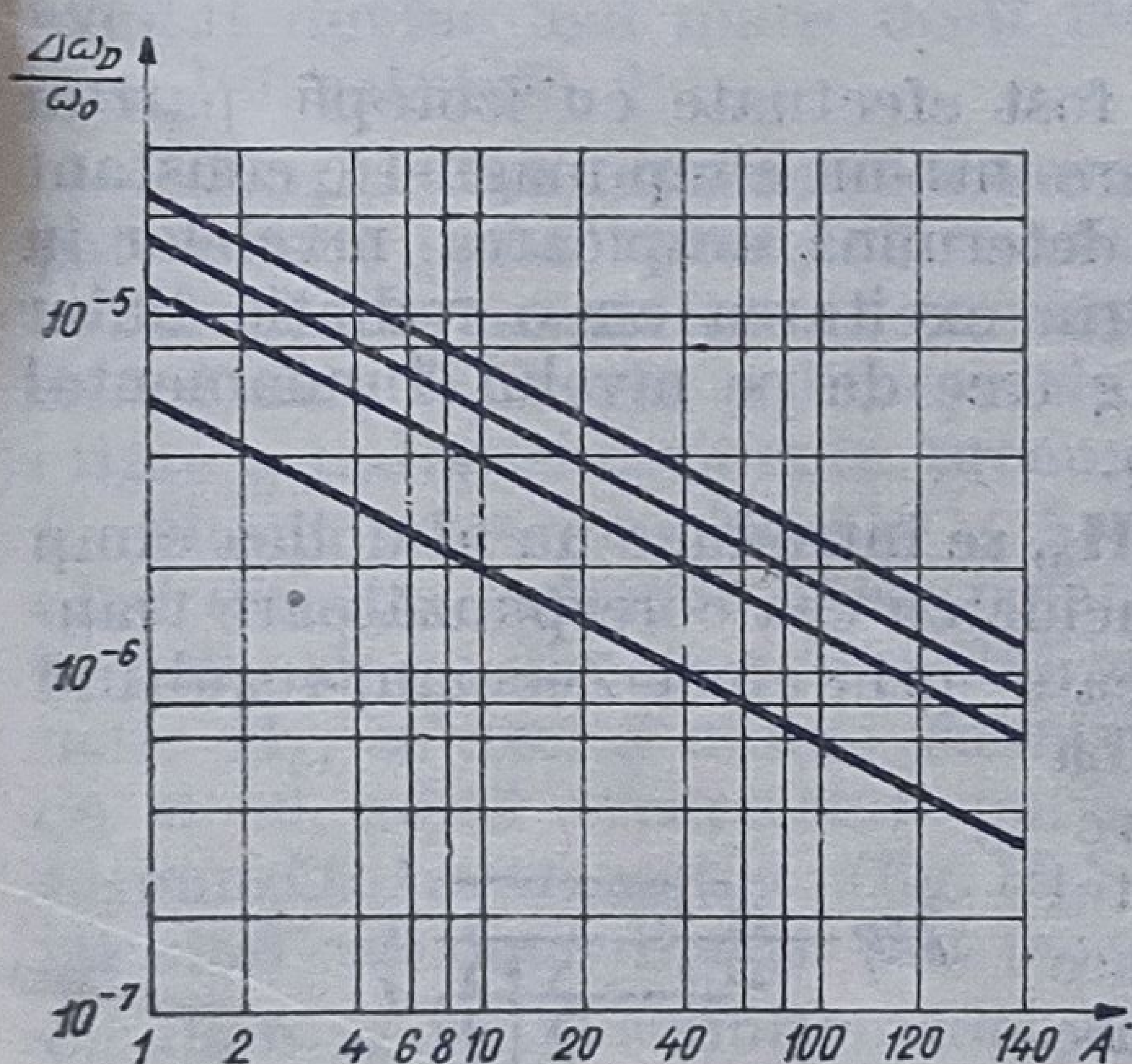


Fig. 15.2

unde T este temperatura în grade Kelvin, iar A masa atomică. Aşa cum arată fig. 15.2 lărgirea Doppler relativă $\frac{\Delta\omega_D}{\omega_0}$ scade cu creşterea masei atomice A.

În cazul în care nivelele energetice atomice sau moleculare între care au loc tranziţiile sînt apropiate, din cauza efectului Doppler liniile spectrale se suprapun astfel că structura aceasta nu poate fi rezolvată prin metodele spectroscopiei liniare convenţionale.

15.2. Spectroscopie cu fascicule atomice şi moleculare

Metoda fasciculelor atomice şi moleculare a fost introdusă în spectroscopie în jurul anului 1930 dar s-a dezvoltat mai ales după descoperirea laserilor acordabili, ea fiind foarte eficientă pentru un număr mare de

tranziții atomice și moleculare, într-un domeniu larg de frecvențe din regiunea ultravioletă pînă în cea infraroșie a spectrului.

Metoda constă în investigarea unui fascicul atomic, colimat cu ajutorul a două diafragme care determină o divergență mică $2\Phi_0$ a fasciculului (fig. 15.3). Atomii din fascicul, care este paralel cu axa Oz, sînt excitați cu ajutorul unei radiații perpendiculare pe direcția lor de mișcare (axa Ox), iar observarea spectrului de fluorescență, fără efect Doppler se face după o direcție perpendiculară pe primele două (axa Oy). Există totuși o lărgire Doppler reziduală a liniilor spectrale $\delta\omega$, datorată divergenței unghiulare a fasciculului atomic dată de relația

$$\delta\omega = 2\Phi_0(v/c)\omega_0 = \Phi_0 \, \Delta\omega_D. \qquad (15.6)$$

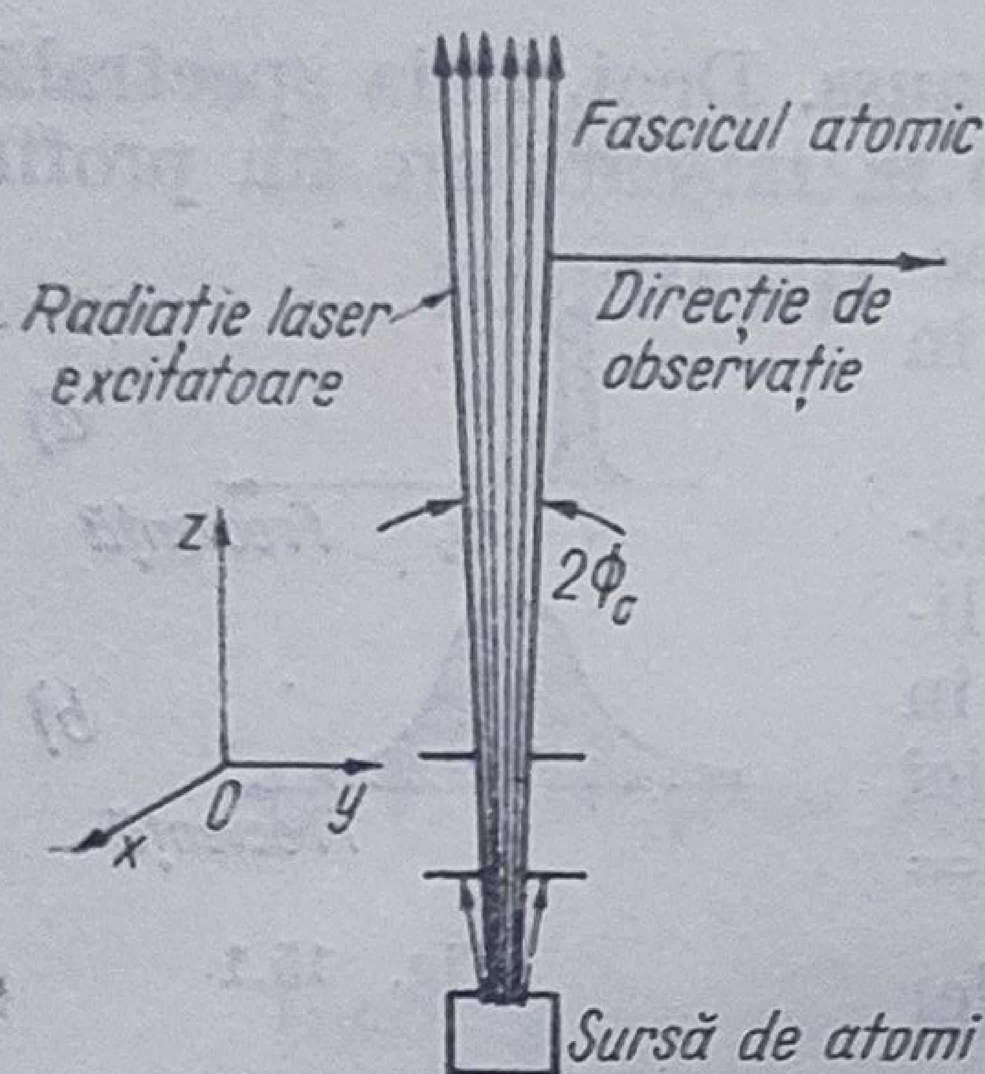


Fig. 15.3

Folosind această metodă, cu ajutorul unui laser cu argon cu $\lambda = 5145$ Å a fost investigat, de exemplu, un fascicul molecular de I_2 [119, 147].

15.3. Dublă rezonanță radiooptică

Prin metoda dublei rezonanțe radiooptice se poate studia structura subnivelelor magnetice ale unei linii spectrale, care este mascată de efectul Doppler.

Primele experiențe [119, 147] au fost efectuate cu izotopii pari ai atomului de Hg, cu spin nuclear zero, care într-un cîmp magnetic constant de intensitate $\mathbf{H}_0$, aplicat din exterior, determină despicarea nivelelor în subnivele magnetice (efect Zeeman). Prin excitarea cu o radiație liniar polarizată cu $\lambda = 2537$ Å, atomii de Hg trec de pe nivelul fundamental 6^1S_0 pe nivelul excitat 6^3P_1 (fig. 15.4).

Perpendicular pe cîmpul constant $\mathbf{H}_0$, se introduce un al doilea cîmp variabil $H_1 \cos \Omega t$, a cărui frecvență coincide cu cea corespunzătoare tranziției între două subnivele vecine, despicate prin efect Zeeman, rezultînd un fenomen de rezonanță magnetică. La tranziția atomilor excitați de pe subnivelele cu $m = \pm 1$ pe nivelul fundamental se obține un spectru de fluorescență, care are două componente circular polarizate $\sigma^\pm$. Întrucît frecvența la care are loc fenomenul de rezonanță magnetică se modifică datorită mișcării atomilor, cu o valoare mică

$$\delta\Omega_D = \frac{v}{c}\,\Omega \qquad (15.7)$$

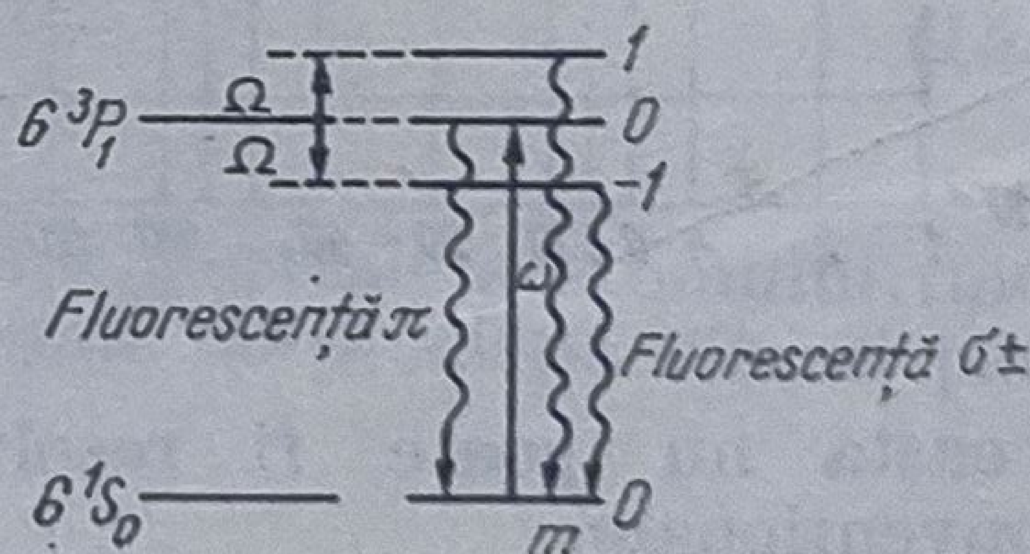


Fig 15.4

liniile de rezonanță magnetică prezintă o lărgire Doppler reziduală care totuși este foarte mică în comparație cu lărgirea Doppler corespunzătoare tranzițiilor optice [59].

În domeniul microundelor, metoda dublei rezonanțe radiooptice a fost aplicată pentru a studia atomii de hidrogen aflați în starea excitată cu $n = 2$ [119, 147].

Folosind laseri acordabili pentru excitare, această metodă poate fi aplicată studiului unui mare număr de atomi și molecule [119].

15.4. Intersecții de nivele

Întrucît energia subnivelelor magnetice ale atomilor depinde de intensitatea cîmpului magnetic exterior, este posibil ca pentru anumite valori ale acestuia să apară intersecții de nivele, însoțite de interferența stărilor atomice, ceea ce conduce la modificarea polarizării și distribuției unghiulare a radiației emise (efect Hanle [119, 147, 161].)

Prin iradierea izotopilor pari ai atomului de Hg cu o radiație liniar polarizată cu $\lambda=2537$ Å aceștia sînt excitați pe nivelul 6^3P_1. Dacă atomii nu se află în cîmp magnetic exterior, radiația obținută la dezexcitare este puternic polarizată (90%), vectorul polarizare al acesteia coincizînd cu vectorul polarizare al luminii incidente, iar distribuția sa unghiulară fiind dependentă de cea a radiației de dipol electric.

Sub acțiunea unui cîmp magnetic exterior de intensitate $\mathbf{H}_0$, paralel cu vectorul polarizare, natura radiației emise nu se schimbă. În cazul în care cîmpul acționează perpendicular pe vectorul polarizare al luminii incidente, gradul de polarizare al radiației emise scade cu creșterea intensității cîmpului, devenind zero cînd despicarea Zeeman a nivelului excitat devine mai mare decît lărgimea lui naturală 2γ.

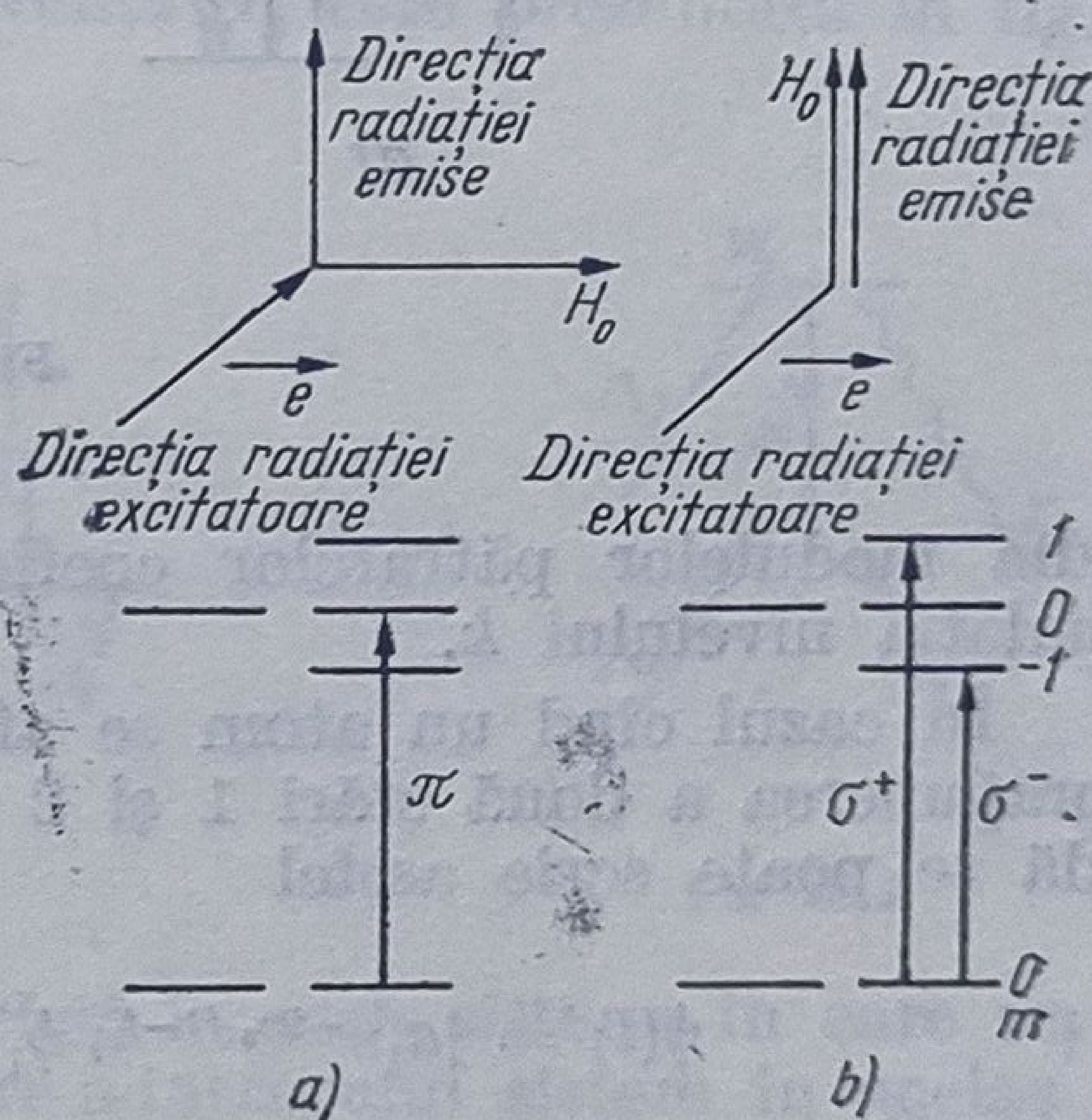


Fig. 15.5

Explicarea fenomenelor care apar se face ținînd seama că excitarea subnivelelor magnetice este dependentă de polarizarea și direcția de excitare a radiației incidente, precum și de cîmpul exterior [59, 119]. Astfel, cînd direcția radiației liniar polarizate coincide cu direcția cîmpului magnetic $\mathbf{H}_0$, se excită numai subnivelul cu $m=0$, adică avem o stare pură, corespunzătoare tranziției π(fig. 15.5, a), iar cînd cele două direcții sînt perpendiculare, se excită simultan două nivele cu $m=\pm1$ (fig. 15.5, b)(cu componentele σ^+ și σ^-), pentru că unda liniar polarizată este formată prin suprapunerea a două unde circular polarizate, stînga și dreapta. În acest ultim caz, momentul de dipol electric al atomului execută o mișcare de precesie în jurul direcției cîmpului magnetic, fapt care conduce la o scădere a gradului de polarizare atunci cînd perioada de precesie este mai lungă decît timpul de viață al stării excitate (despicare Zeeman mică) și la o depolarizare totală în cazul cînd despicarea Zeeman este comparabilă cu lărgimea naturală a nivelului.

Întrucît această metodă nu necesită folosirea unui cîmp de radiofrecvență, rezoluția este determinată de lărgimea naturală a nivelelor implicate în tranziții și cu ajutorul ei s-au putut determina timpii de viață ai nivelelor excitate [119, 161].

15.5. Bătăi cuantice

Metoda bătăilor cuantice are la bază la fel ca și metoda intersecției de nivele, superpoziția stărilor atomice, conform căreia funcția de undă $\psi(t)$ a unui atom în stare excitată se poate exprima cu ajutorul funcțiilor de undă ψ_k corespunzătoare diferitelor nivele care au energia E_k

$$\psi(t) = \sum_k a_k \psi_k e^{-iE_k t/\hbar}. \tag{15.8}$$

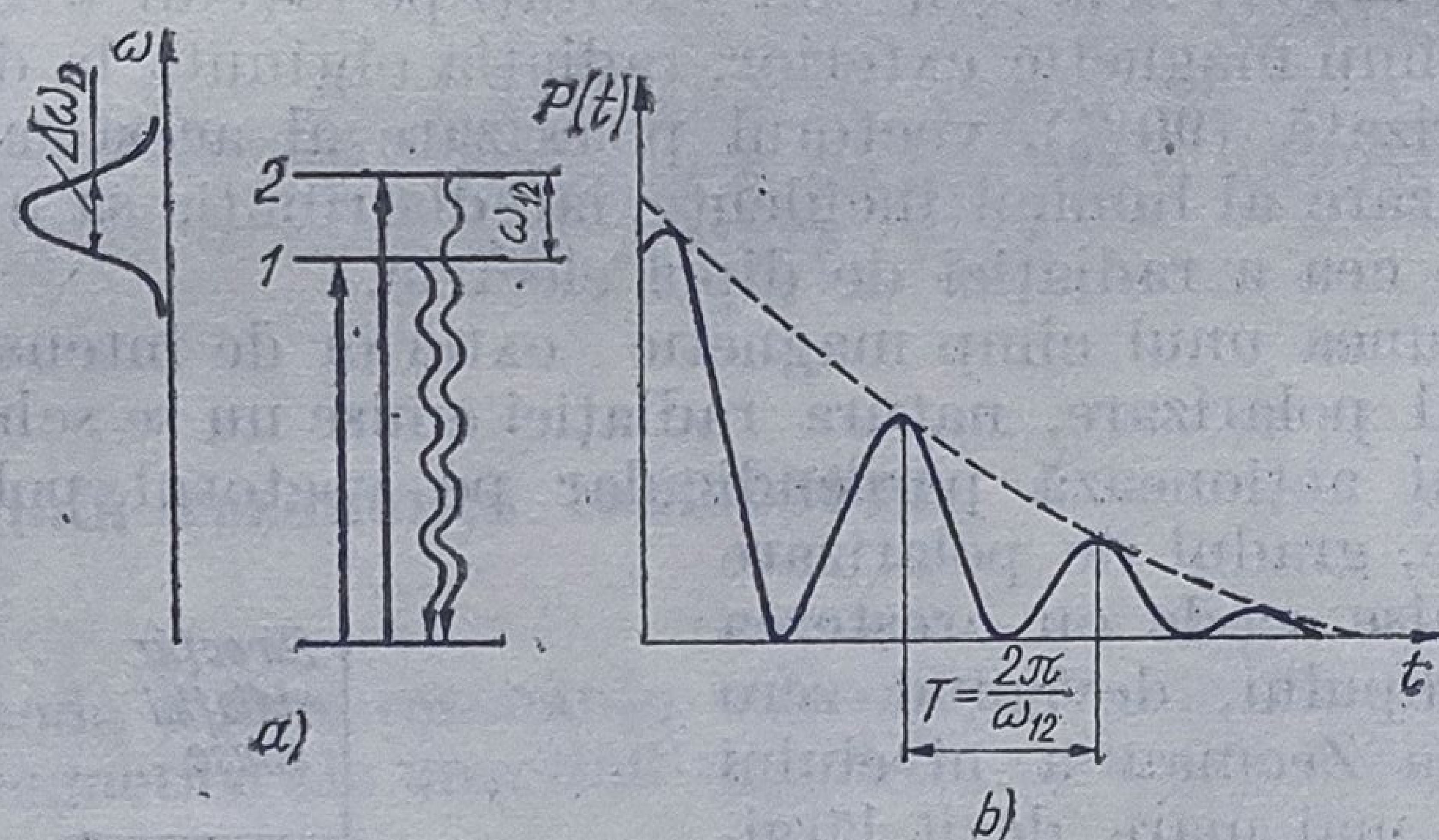


Fig. 15.6

Media modulelor pătratelor coeficienților complecși $\langle |a_k|^2 \rangle$ determină populația nivelului k.

În cazul cînd un atom se află într-o stare excitată rezultată prin suprapunerea a două stări 1 și 2 învecinate (fig. 15.6,a), funcția lui de undă se poate scrie astfel

$$\psi(t) = |a_1 e^{-i\omega_{01}(t-t_0)} \psi_1 + a_2 e^{-i\omega_{02}(t-t_0)} \psi_2 | e^{-\gamma(t-t_0)} \tag{15.9}$$

Probabilitatea de tranziție $P(t)$ pe nivelul fundamental, calculată cu ajutorul elementelor de matrice $|\langle \psi_0 | \mathbf{d} | \psi \rangle|^2$, unde $\mathbf{d}$ este operatorul momentului de dipol, oscilează cu frecvența $\omega_{12} = \omega_{01} - \omega_{02}$, adică prezintă fenomenul de „bătăi cuantice'' (fig. 15.6,b).

Cu ajutorul acestei metode poate fi investigată structura hiperfină a stărilor excitate folosind pentru excitare fie pulsuri scurte (10^{-7} s), dată de o lampă de Cd sau de un laser acordabil [145], fie fascicule de electroni [147, 161].

16. LĂRGIREA LINIILOR SPECTRALE ȘI EFECTE DE ÎNGUSTARE

16.1. Mecanisme de lărgire omogenă a liniilor spectrale

Absorbția unei radiații de intensitate constantă I_ν, dar variabilă în domeniul frecvențelor, la trecerea printr-un mediu absorbant de grosime x, caracterizat de coeficientul de absorbție α, are loc după legea Lambert--Beer

$$I_\nu = I_{\nu_0} e^{-\alpha x}. \tag{16.1}$$

Variația intensității și a coeficientului de absorbție funcție de frecvență într-o linie de absorbție centrată pe frecvența ν_0 este prezentată în fig. 16.1,a, b.

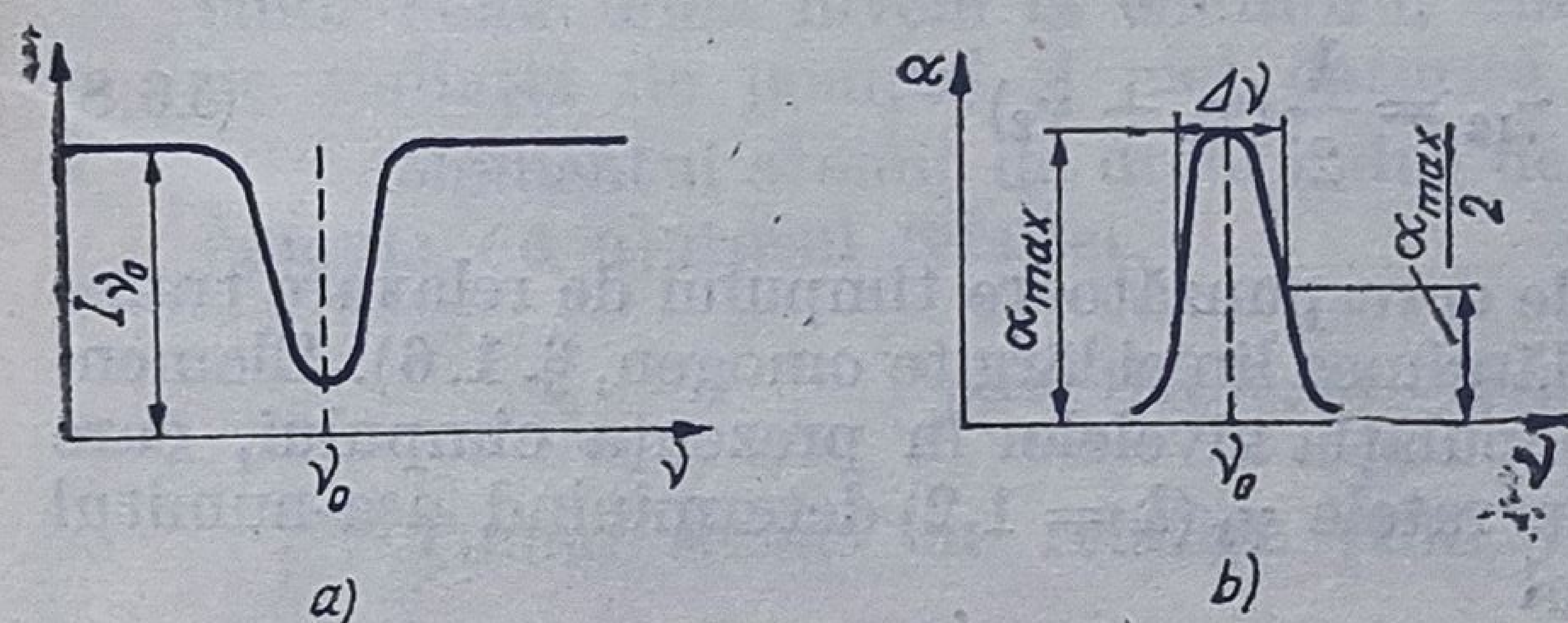


Fig. 16.1

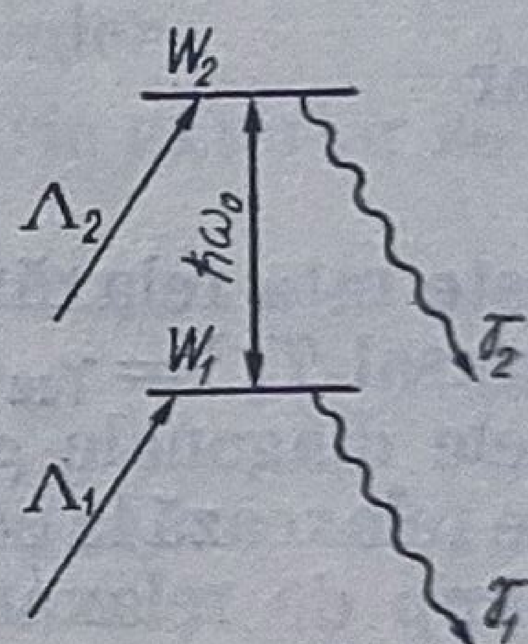


Fig 16.2

Mecanismele de lărgire omogenă se referă la acele sisteme în care se lărgește linia fiecărui atom și prin urmare a întregului sistem în acelaș mod. Forma liniei de absorbție și emisie a unui astfel de sistem depinde de mai mulți factori.

16.1.1. Lărgimea naturală a liniilor spectrale și lărgirea datorită saturației

Pentru a determina forma liniei corespunzătoare unei tranziții între nivelele 1 și 2 (fig. 16.2) se poate folosi formalismul matricei de densitate (anexa 1). Ecuația de mișcare pentru un astfel de sistem cuantic are forma:

$$\frac{d\rho}{dt} = i\hbar^{-1}[H, \rho] - \frac{1}{2}(\Gamma_{1,2}\rho + \rho\Gamma_{1,2}) \tag{16.2}$$

unde

$$H = \begin{bmatrix} W_1 & -dE \\ -dE & W_2 \end{bmatrix} \tag{16.3}$$

reprezintă hamiltonianul sistemului perturbat de cîmpul electric exterior $E(t) = E_0 \exp(i\omega t) + \text{c.c.}$, W_1 și W_2 sînt energiile corespunzătoare celor două nivele, d operatorul momentului electric de dipol,

$$\Gamma_{1,2} = \begin{bmatrix} \gamma_1 & 0 \\ 0 & \gamma_2 \end{bmatrix} \tag{16.4}$$

este o matrice diagonală determinată de ratele γ_1 și γ_2 corespunzătoare dezexcitării atomilor de pe nivelele 1 respectiv 2 pe celelalte nivele. Ținînd seamă de relațiile (16.3) și (16.4) se obțin următoarele ecuații de mișcare pentru elementele matricei densitate

$$\frac{d\rho_{12}}{dt} = (i\omega_0 - \gamma_{12})\rho_{12} - i\hbar^{-1} dE(\rho_{11} - \rho_{22}) \tag{16.5}$$

$$\frac{d\rho_{11}}{dt} = -\gamma_1(\rho_{11} - \rho_{11}^0) - i\hbar^{-1} dE(\rho_{12} - \rho_{21}) \tag{16.6}$$

$$\frac{d\rho_{22}}{dt} = -\gamma_2(\rho_{22} - \rho_{22}^0) + i\hbar^{-1} dE(\rho_{12} - \rho_{21}) \tag{16.7}$$

unde $\rho_{21} = \rho_{12}^*$

iar

$$\gamma_{12} = \frac{1}{2}(\gamma_1 + \gamma_2) \tag{16.8}$$

este rata relaxării transversale corespunzătoare timpului de relaxare transversal $T_2^{-1} = \gamma_{12}$ (γ fiind semilărgimea liniei lărgite omogen, §. 1.6). Elementele diagonale ρ_{kk}, descriu populația nivelelor în prezența cîmpului, care se relaxează la echilibru ρ_{kk}^0 cu ratele γ_k ($k = 1,2$) determinînd așa-numitul timp de relaxare longitudinal

$$T_1 = \frac{1}{2}\left(\frac{1}{\gamma_1} + \frac{1}{\gamma_2}\right) = \frac{1}{\gamma} \tag{16.9}$$

Elementele nediagonale $\rho_{k'k}$ $(k' \neq k)$ descriu momentul de dipol care se relaxează cu rata γ .

Considerînd că cele două nivele 1 și 2 sînt lărgite cu cantitățile $\pm\frac{\gamma_1}{2}$ și $\pm\frac{\gamma_2}{2}$, lărgimea tranziției dintre cele două nivele, pentru semnal mic, este determinată de suma lărgimilor nivelelor, deci $2\gamma = \gamma_1 + \gamma_2$.

(Prin lărgimea unei linii se înțelege după cum s-a mai menționat lărgimea ei la jumătate din înălțimea maximă (fig. 16.1,b)).

Lărgimea naturală a liniei, obținută în urma tranzițiilor spontane între cele două nivele, este determinată de probabilitatea emisiei spontane cu ajutorul relației

$$\Delta\omega_s = 1/2\,\tau_s, \tag{16.10}$$

media timpilor de viață τ_s în stările 1 şi 2 fiind

$$\tau_s = \frac{\pi \varepsilon_0 c^3 \hbar}{|\mathbf{d}_{12}|^2 \omega_0^2} \tag{16.11}$$

dacă se neglijează tranzițiile pe celelalte nivele. Întrucît lărgimea liniei naturale este proporțională cu cubul frecvenței, ea poate fi neglijată în domeniul infraroşu îndepărtat însă devine apreciabilă în domeniul vizibil. Pentru molecule ea are valori cuprinse între 10^5-10^7 Hz iar pentru atomi $10-10^3$ Hz .

Soluția sistemului de ecuații (16.5)—(16.7) este de forma

$$\rho_{12} = -\frac{ix \exp(i\omega t)}{i(\omega-\omega_0)+\gamma_{12}}(\rho_{11}-\rho_{22})/2 \tag{16.12}$$

$$\rho_{11} = \rho_{11}^0 - \frac{\gamma_{12}}{2\gamma_1}\Delta\rho^0 \frac{|x|^2}{(\omega-\omega_0)^2+\gamma_{12}^2+\gamma_{12}T_1|x|^2} \tag{16.13}$$

$$\rho_{22} = \rho_{22}^0 + \frac{\gamma_{12}}{2\gamma_2}\Delta\rho^0 \frac{|x|^2}{(\omega-\omega_0)^2+\gamma_{12}^2+\gamma_{12}T_1|x|^2} \tag{16.14}$$

unde $x = \frac{d_{12}E_0}{\hbar}$ este frecvența Rabi caracteristică, corespunzătoare undei luminoase liniar polarizate, d_{12} componenta momentului de dipol de-a lungul cîmpului electric exterior, $\Delta\rho^0 = \rho_{11}^0 - \rho_{22}^0$ diferența populațiilor celor două nivele la echilibru, cînd nivelele nu sînt excitate nici de radiația de pompaj şi nici datorită agitației termice.

Momentul atomic de dipol indus de cîmpul electric exterior se poate calcula cu ajutorul relației

$$p = \text{Urm}(\rho d) = \rho_{12}d_{21} + \text{c.c.} \tag{16.15}$$

Ținînd seama de relațiile (16.12)—(16.14) rezultă

$$p = -\frac{|d_{12}|^2}{2\hbar}\Delta\rho^0 \frac{\omega-\omega_0+i\gamma_{12}}{(\omega-\omega_0)^2+\gamma_{12}^2+\gamma_{12}T_1|x|^2}E_0\exp(i\omega t)+\text{c.c.} \tag{16.16}$$

În cazul unui sistem gazos, format din N atomi pe unitatea de volum pentru care considerăm doar două nivele energetice, polarizarea macroscopică este Np, iar susceptibilitatea electrică corespunzătoare se poate scrie sub forma

$$\chi(\omega) = -\frac{N\Delta\rho^0|\mathbf{d}_{12}|^2 k}{\varepsilon_0 \hbar}\frac{\omega-\omega_0+i\gamma_{12}}{(\omega-\omega_0)^2+\gamma_{12}^2+\gamma_{12}T_1|x|^2} = \chi' - i\chi''. \tag{16.17}$$

Puterea absorbită de sistemul gazos este proporțională cu partea imaginară a susceptibilității

$$\chi''(\omega) = \frac{N\Delta\rho^0|\mathbf{d}_{12}|^2 k}{\varepsilon_0 \hbar}\cdot\frac{\gamma_{12}}{(\omega-\omega_0)^2+\gamma_{12}^2+\gamma_{12}T_1|x|^2}, \tag{16.18}$$

Forma liniei are un profil lorentzian, iar semilărgimea ei este determinată de intensitatea cîmpului electric prin relaţia

$$\Delta\omega_L = \left(\gamma_{12}^2 + \gamma_{12} T_1 \left| \frac{\mathbf{d}_{12}\mathbf{E}_0}{\hbar} \right|^2 \right)^{1/2} \quad (16.19)$$

Întrucît pătratul frecvenţei Rabi caracteristice $|x|^2$, este proporţional cu puterea radiaţiei incidente P, lărgirea datorată acesteia se numeşte şi de saturaţie, iar relaţia (16.19) poate fi scrisă şi sub forma

$$\Delta\omega_L = \gamma_{12}\sqrt{1 + P/P_s} \quad (16.20)$$

unde

$$P_s = \frac{\varepsilon_0 c\hbar^2 A\gamma_{12}}{2|\mathbf{d}_{12}|^2 T_1} \quad (16.21)$$

reprezintă puterea corespunzătoare saturaţiei, A aria de interacţie, P/P_s gradul de saturaţie. Lărgimea liniei datorată saturaţiei are o valoare de ordinul $10^4 - 10^5$ Hz pentru o intensitate de 1 MW/cm².

26.1.2. Lărgirea omogenă a liniilor spectrale datorită ciocnirilor

Pentru a include efectul ciocnirilor în mecanismele de lărgire omogenă a liniilor spectrale considerăm un ansamblu de particule (atomi sau molecule) care se află în repaus şi care sînt perturbate numai de ciocniri cu alte particule. De asemenea, pentru a simplifica tratarea teoretică a fenomenelor nu se ia în considerare efectul Doppler.

Există două tipuri de ciocniri : care induc tranziţii şi care schimbă faza funcţiilor de undă atomice.

Ciocniri care induc tranziţii. În cazul în care energia necesară atomilor pentru a efectua tranziţii între două nivele nu este prea mare în comparaţie cu energia lor cinetică, atunci ciocnirile pot induce tranziţii între diferite nivele. Totuşi, tranziţiile induse de ciocniri sînt neglijabile în comparaţie cu tranziţiile optice pe care le suferă atomii. Dacă sistemul gazos este format din molecule biatomice sau poliatomice ciocnirile pot induce tranziţii pe diferite nivele rotaţionale şi mai puţin pe nivelele vibraţionale.

Frecvenţa ciocnirilor este proporţională cu presiunea gazului şi în acest caz efectul relaxării populaţiei poate fi tratat modificînd ratele de relaxare care intervin în relaţia (16.4), astfel

$$\tilde{\gamma}_1 = \gamma_1^0 + c_1 p \quad (16.22)$$

$$\tilde{\gamma}_2 = \gamma_2^0 + c_2 p \quad (16.23)$$

unde c_1 şi c_2 sînt probabilităţile de tranziţie induse de ciocniri de pe nivelul 1 respectiv 2, pe unitatea de presiune, iar γ_1^0 şi γ_2^0 sînt ratele de relaxare neperturbate de ciocniri. Astfel, relaţia (16.8) devine

$$\tilde{\gamma}_{12} = \frac{1}{2}(\tilde{\gamma}_1^0 + \tilde{\gamma}_2^0) + \frac{p}{2}(c_1 + c_2) \quad (16.24)$$

şi pune în evidenţă lărgirea liniei spectrale datorită ciocnirilor, valoarea ei fiind de aproximativ $3 \cdot 10^3 - 3 \cdot 10^4$ Hz, pentru o presiune de 1 mmHg.

Dacă se ține seama de ciocnirile atomilor cu pereții incintei, lărgirea liniei este determinată de $\frac{v_0}{2\pi L}$, unde v_0 este viteza medie, iar L este diametrul incintei și are valoarea de 10^3—10^4Hz.

Ciocniri care produc schimbarea fazei funcțiilor de undă atomice. În comparație cu ciocnirile care schimbă populațiile diferitelor nivele energetice, ciocnirile care schimbă fazele funcțiilor de undă atomice sînt mult mai frecvente. Astfel, dacă prin ciocnire, faza stării 1 este modificată cu cantitatea θ_1, iar faza stării 2 cu cantitatea θ_2, rezultă o modificare a matricei densitate cu cantitatea

$$(\Delta \rho_{12})_c = \langle \exp(i\Delta\theta) - 1 \rangle \rho_{12} \tag{16.25}$$

unde $\Delta\theta = \theta_1 - \theta_2$ este o cantitate care are un caracter statistic și depinde de parametrul de ciocnire și de viteza atomilor.

Există trei tipuri de ciocniri : ciocniri slabe care produc o schimbare mică a fazei $\Delta\theta \ll 1$, ciocniri tari care produc o schimbare puternică a fazei $\Delta\theta \gg 1$ și ciocniri pentru care $\Delta\theta \simeq 1$ întîlnite în cazul general.

Dacă se consideră cazul ciocnirilor slabe, care sînt caracterizate de un parametru de ciocnire mare, media statistică din (16.25) se poate aproxima cu relația

$$(\Delta \rho_{12})_c \simeq i\langle \Delta\theta \rangle \rho_{12}. \tag{16.26}$$

Se obține astfel o modificare a frecvenței, care poate fi determinată prin înlocuirea expresiei

$$\left(\frac{\delta \rho_{12}}{\delta t}\right)_c = if \langle \Delta\theta \rangle \rho_{12} \tag{16.27}$$

în relația (16.5), f fiind frecvența de ciocnire. Linia spectrală rezultată are o frecvență diferită, $\omega_0 + f\langle\Delta\theta\rangle$, profilul ei rămînînd tot lorentzian și avînd aceeași lărgime.

În cazul general, $\Delta\theta \simeq 1$ și atît faza cît și amplitudinea sînt modificate de ciocniri conform relației

$$\left(\frac{\delta \rho_{12}}{\delta t}\right)_c = f\langle \exp(i\Delta\theta) - 1 \rangle \rho_{12} = -(\gamma_c' - i\gamma_c'')\rho_{12} \tag{16.28}$$

unde γ_c' și γ_c'' reprezintă părțile reală, respectiv imaginară ale ratei de relaxare datorită ciocnirilor. La presiuni scăzute, în cazul ciocnirilor binare, frecvența de ciocnire f este proporțională cu presiunea p, iar ratele de relaxare au expresiile

$$\gamma_c' = c_{12}' p \tag{16.29}$$

$$\gamma_c'' = c_{12}'' p. \tag{16.30}$$

În acest caz, înlocuind frecvența liniei spectrale

$$\omega_0 = (W_2 - W_1)/\hbar + c_{12}'' p \tag{16.31a}$$

și rata de relaxare

$$\gamma_{12} = \frac{1}{2}(\gamma_1 + \gamma_2) + c_{12}' p \tag{16.31b}$$

în relația (16.18) se obține forma liniei spectrale. Ținînd seama de relația (16.31b) și de definiția timpului de relaxare longitudinal, se observă că acesta nu este afectat de ciocniri în cazul general.

Dacă se iau în considerare ciocnirile tari, ($\Delta\theta \gg 2\pi$), astfel că faza de oscilație a dipolilor se modifică foarte mult, întrucît $\gamma_c'' = 0$, $\gamma_c' = f$ și $\langle \exp(i\Delta\theta)\rangle = 0$.

În cazul real, ciocnirile pot să schimbe atît fazele funcțiilor de undă cît și populațiile diferitelor nivele energetice în același timp. Frecvența centrului liniei se calculează cu ajutorul relației (16.31 a), dacă modificarea populațiilor nivelelor energetice nu afectează linia, iar semilărgimea ei variază liniar cu presiunea conform relației de mai jos

$$\tilde{\gamma}_{12} = \frac{1}{2}(\gamma_1 + \gamma_2) + \frac{p}{2}(2c_{12} + c_1 + c_2). \tag{16.32}$$

Valorile experimentale ale constantelor care determină lărgirea liniei datorită presiunii sînt de ordinul $1 - 30$ MHz/torr și depind de temperatură și de natura moleculelor ce compun gazul.

Timpul de relaxare longitudinal în acest caz general este dat de o expresie de forma

$$T_1 = \frac{1}{2}[(\gamma_1 + c_1 p)^{-1} + (\gamma + c_2 p)^{-1}]. \tag{16.33}$$

În general, ciocnirile care produc modificarea fazei funcțiilor de undă domină mecanismele de lărgire, iar termenul $c_{12}p$ are valori mari, excepție făcînd cazurile presiunilor foarte scăzute.

16.1.3. Lărgirea omogenă a liniilor spectrale datorită timpului de tranzit

În acest caz, lărgirea liniilor spectrale se datorește intervalului de timp finit, $\tau_{tr} = L/v_0$, în care are loc interacția unei molecule ce se mișcă cu viteza v_0 printr-un fascicul de lumină cu diametrul L. Ținînd seama de principiul de nedeterminare $\Delta E \cdot \tau_{tr} \simeq \hbar$, se obține lărgimea liniei spectrale datorită timpului de tranzit

$$\Delta\omega_{tr} = \frac{1}{\tau_{tr}} \tag{16.34}$$

care are o valoare de ordinul $10^3 - 10^4$ Hz. Întrucît moleculele care trec prin fasciculul luminos au o anumită distribuție după viteze care nu este întotdeauna de tip maxwellian, forma exactă a liniei se obține prin integrarea după această funcție de distribuție.

Lărgirea liniilor datorită timpului de tranzit este determinată de forma fasciculului [147], care poate fi gaussiană sau sferică.

Lărgirea omogenă a liniilor spectrale datorită timpului de tranzit prin fascicule gaussiene. În cazul unui fascicul laser de formă gaussiană care se propagă de-a lungul axei z, suprafața de undă este considerată plană pe lărgimea fasciculului, iar distribuția cîmpului electric este dată de relația

$$E(x, y, t) = E_0 \exp(-r^2/w^2) \cos \omega_0 t \tag{16.35}$$

unde $r^2 = x^2+y^2$, iar w este lărgimea fasciculului. Ținînd seama că funcția de autocorelație a cîmpului corespunzătoare unui atom care traversează fasciculul cu viteza v este dată de relația

$$R(T) \sim \exp(-v^2T^2/2w^2)\cos\omega_0 T \tag{16.36}$$

unde T este durata oscilației libere, transformata Fourier a relației (16.36) conduce la o formă gaussiană a liniei spectrale

$$G(\omega) \sim \exp[-(\omega-\omega_0)^2w^2/2v^2] \tag{16.37}$$

a cărei semilărgime este

$$\Delta\omega = \sqrt{2\ln 2}\,(v/w). \tag{16.38}$$

Efecte de lărgire omogenă a liniilor spectrale datorate timpului de tranzit prin suprafețe de undă sferice. Suprafața de undă a unui fascicul gaussian este curbă în afara centrului fasciculului. Curbarea suprafeței de undă are ca efect scurtarea timpului de tranzit și lărgirea liniilor spectrale.

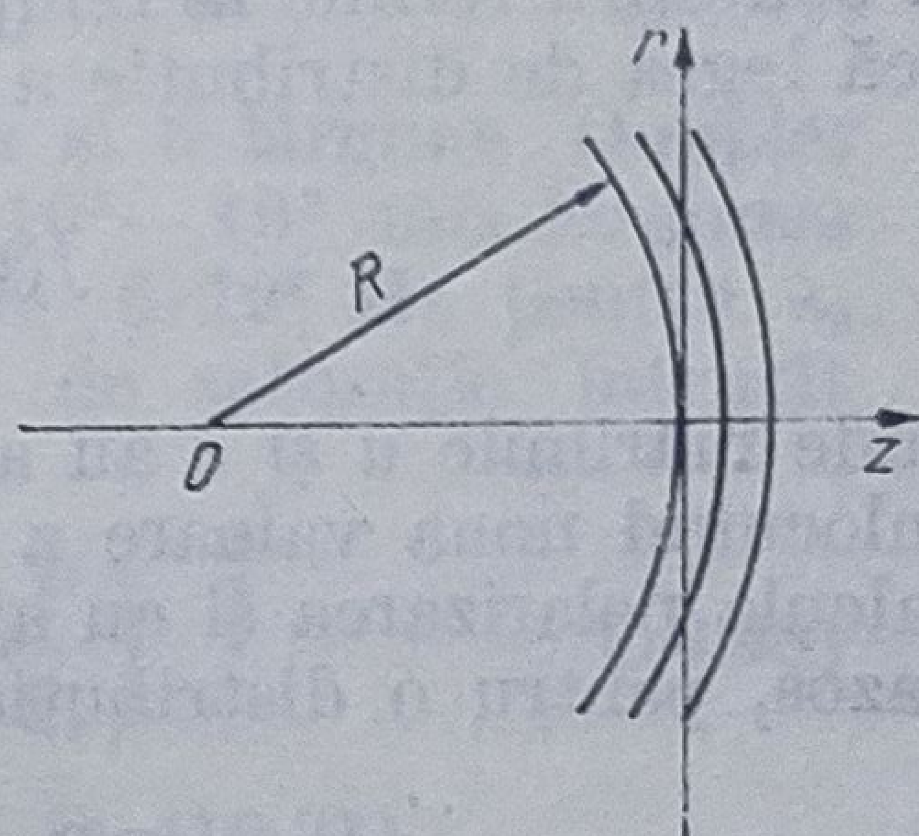


Fig. 16.3

În acest caz intensitatea cîmpului electric al unui fascicul gaussian care se propagă de-a lungul axei z, ca în fig. 16.3, este dat de relația

$$E(r,z,t) = E_0 \exp\left[-\frac{r^2}{w^2} + \mathrm{i}\left(\omega_0 t - kz - \frac{kr^2}{2R}\right)\right] \tag{16.39}$$

unde w este lărgimea fasciculului laser, R raza de curbură a suprafeței de undă corespunzătoare poziției unde se află atomul, iar $k = \omega/c$ vectorul de undă.

Calculînd transformata Fourier a cîmpului dat de relația (16.39) se obține forma liniei spectrale

$$I(\omega) \sim \exp\left[-\frac{(\omega-\omega_0)^2}{2v^2}\cdot\frac{w^2R^2\lambda^2}{R^2\lambda^2+\pi^2w^4}\right] \tag{16.40}$$

și semilărgimea ei

$$\Delta\omega = \sqrt{2\ln 2}\,v\,(w^{-2}+w_R^{-2})^{1/2} \tag{16.41}$$

unde $w_R = R\lambda/\pi w$. În cazul în care $R \gg \pi w/\lambda$ relația (16.40) este aceeași cu relația (16.37) întrucît $w_R \gg w$, acestea fiind dealtfel și condițiile ce trebuie îndeplinite pentru ca liniile spectrale să nu fie mult lărgite. De exemplu, pentru $w = 1$ cm, $\lambda = 3$ µm, raza de curbură trebuie să fie mai mare de 100 m. Suprafețele de undă plane sînt folosite mai ales în spectroscopia de mare putere de rezoluție, cum ar fi de exemplu, spectroscopia prin absorbție saturată și cea cu ajutorul fasciculelor atomice.

16.2. Mecanisme de lărgire neomogenă a liniilor spectrale

La presiuni scăzute și în absența oricărui cîmp neomogen exterior, liniile spectrale sînt lărgite prin efect Doppler, datorită mișcării atomilor (moleculelor). În acest caz frecvențele de tranziție ale atomilor sînt diferite și sînt dispuse într-o bandă de o anumită lărgime, în jurul frecvenței de tranziție.

16.2.1. Lărgirea neomogenă a liniilor spectrale datorită efectului Doppler

Dacă un atom (moleculă) se mişcă cu viteza $\mathbf{v}$ şi nu luăm în considerare ciocnirile, la interacţia cu o undă plană, frecvenţa proprie ω_0 corespunzătoare unei tranziţii cuantice este schimbată datorită efectului Doppler cu cantitatea $\mathbf{k}\cdot\mathbf{v}$, unde $\mathbf{k}$ este vectorul de undă. La calculul frecvenţei de tranziţie se ţine seama numai de componenta vitezei de-a lungul direcţiei de propagare. Componentele vitezelor moleculelor unui gaz aflat în echilibru termic la temperatura T, de-a lungul unei direcţii fixate verifică legea de distribuţie a lui Maxwell

$$f(v) = \left(\frac{1}{\sqrt{\pi}\,u}\right)\exp\left(-\frac{v^2}{u^2}\right) \qquad (16.42).$$

unde mărimile u şi v au aceeaşi semnificaţie fizică ca şi în relaţia (15.3) Înlocuind noua valoare a frecvenţei, $\omega_0 + \mathbf{kv}$, în relaţia (16.16) se poate calcula polarizarea şi cu ajutorul ei susceptibilitatea electrică a sistemului gazos, pentru o distribuţie maxwelliană a vitezelor

$$\chi(\omega) = -\frac{N\Delta\rho^0|d_{12}|^2}{\varepsilon_0\hbar}\int_{+\infty}^{-\infty} f(v)\frac{\omega-\omega_0-\mathbf{kv}+i\gamma_{12}}{(\omega-\omega_0-\mathbf{kv})^2+\gamma_{12}^2+\gamma_{12}T_1|x|^2}\,dv. \qquad (16.43)$$

Ţinînd seama de relaţile (16.42) şi (16.43), coeficientul de absorbţie poate fi scris sub forma unei integrale de convoluţie (Voigt) [147]

$$\alpha(\omega) = \frac{(N_1-N_2)|\mathbf{d}_{12}|^2 k\gamma_{12}}{\sqrt{\pi}\,\varepsilon_0\hbar u}\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{\exp\left(-\frac{v^2}{u^2}\right)}{(\omega-\omega_0-\mathbf{kv})^2+\gamma_{12}^2+\gamma_{12}T_1|x|^2}\,dv \qquad (16.44)$$

unde $N_1 - N_2 = N\Delta\rho^0$ reprezintă diferenţa dintre populaţiile celor două nivele fără ca acestea să sufere fenomenul de inversie. Coeficientul de absorbţie obţinut cu ajutorul relaţiei (16.44) ţine seamă de efectul Doppler, de efectele de relaxare longitudinală şi transversală, precum şi de cel de saturaţie. De asemenea, pot fi incluse şi efectele datorate ciocnirilor, înlocuind valorile lui γ_{12} şi T_1 cu cele date în relaţiile (16.32), (16.33).

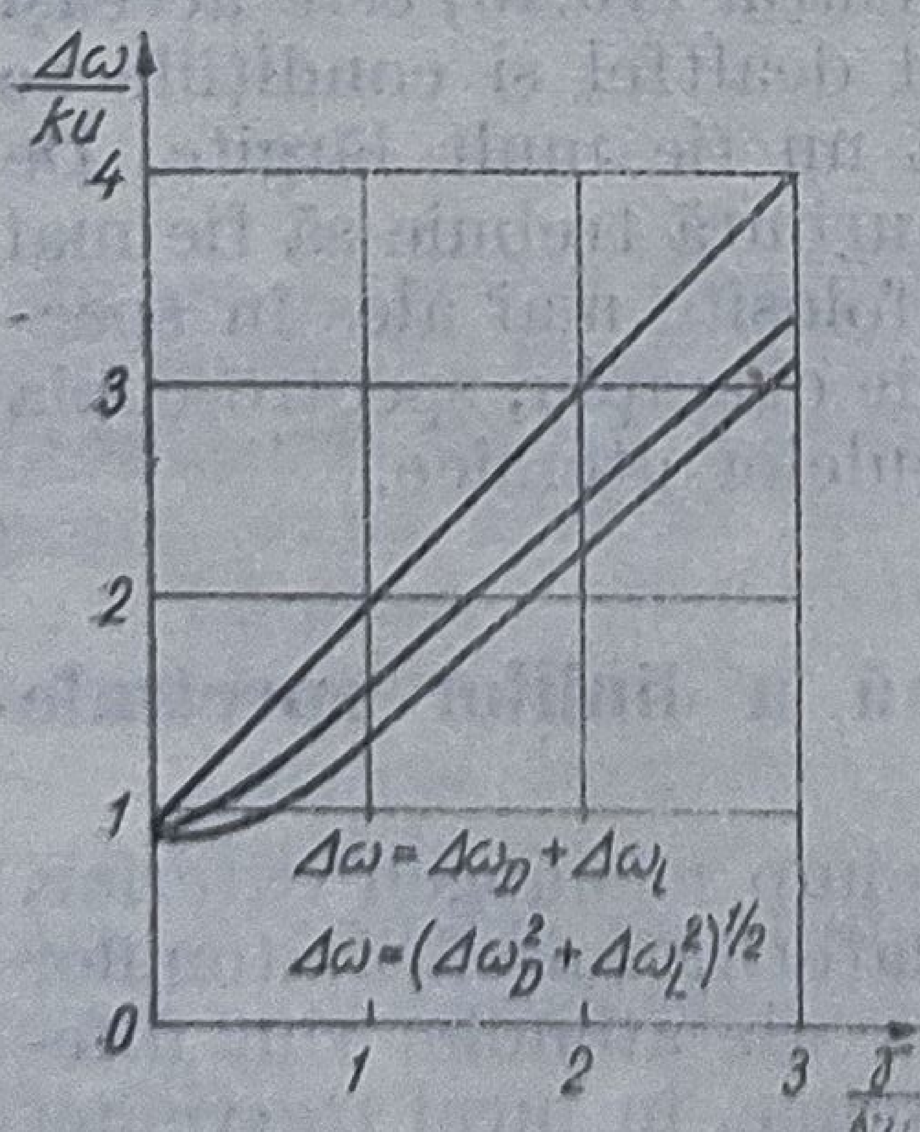


Fig. 16.4

Semilărgimea liniei lărgite neomogen corespunzătoare relaţiei (16.44) în cazul unui semnal puternic este reprezentată funcţie de lărgimea Doppler în fig. 16.4, ea fiind cuprinsă între curbele determinate de funcţiile $\Delta\omega_D + \Delta\omega_L$ şi $(\Delta\omega_D^2 + \Delta\omega_L^2)^{1/2}$, unde $\Delta\omega_L$ este semilărgimea omogenă (16.19), iar

$$\Delta\omega_D = ku\sqrt{\ln 2} = 0{,}833\ \omega_0 u/c \qquad (16.45)$$

este semilărgimea Doppler.

Comportarea sistemului gazos aflat în interacție cu un cîmp puternic, în absența saturației este descrisă de susceptibilitatea de semnal mic,

$$\chi_L(\omega) = \frac{(N_2 - N_1)\,|\mathbf{d}_{12}|^2}{\sqrt{\pi}\,\varepsilon_0 \hbar u} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-v^2/u^2)}{\omega - \omega_0 - \mathbf{kv} - i\gamma_{12}}\, dv. \qquad (16.46)$$

În cazul cînd lărgimea omogenă este mai mică decît lărgimea Doppler, adică $\Delta\omega_L \ll \mathbf{ku}$, relația (16.44) devine

$$\alpha(\omega) = \alpha_0 \exp\left[-(\omega - \omega_0)^2/k^2u^2\right] \qquad (16.47)$$

căreia îi corespunde o formă a liniei de tip Gauss și o lărgime Doppler $\Delta\omega_D$. Pentru viteze ale moleculelor cuprinse între $10^2 - 10^3$ m/s lărgimea Doppler este de $3 \cdot 10^7$ Hz pentru $\lambda_1 = 10^{-5}$m și de $6 \cdot 10^8$ Hz pentru $\lambda_2 = 0{,}5 \cdot 10^{-6}$ m. (Relația (16.47) conține și efecte de saturație întrucît mărimea

$$\alpha_0 = \frac{\sqrt{\pi}}{\varepsilon_0 \hbar u} (N_1 - N_2)\,|\mathbf{d}_{12}|^2 \left(1 + \frac{P}{P_s}\right)^{-\frac{1}{2}} \qquad (16.48)$$

este funcție de puterea corespunzătoare saturației P_s (16.21).)

16.2.2. Depopularea selectivă

Pentru a calcula pentru un sistem gazos populațiile nivelelor energetice 1 și 2 funcție de viteză, se înlocuiește în relațiile (16.12)—(16.14) frecvența ω_0 cu valoarea $\omega_0 + \mathbf{kv}$, obținîndu-se expresiile

$$N_1(v) = N_1^0(v) - \frac{\gamma_{12}}{2\gamma_1} \Delta N^0(v) \frac{|x|^2}{(\omega - \omega_0 - \mathbf{kv})^2 + (\Delta\omega_L)^2} \qquad (16.49)$$

$$N_2(v) = N_0^2(v) + \frac{\gamma_{12}}{2\gamma_2} \Delta N^0(v) \frac{|x|^2}{(\omega - \omega_0 - \mathbf{kv})^2 + (\Delta\omega_L)^2} \qquad (16.50)$$

unde $N_1^0(v) = N \rho_{11}^0 f(v)$ (16.51)

și $N_2^0(v) = N \rho_{22}^0 f(v)$ (16.52)

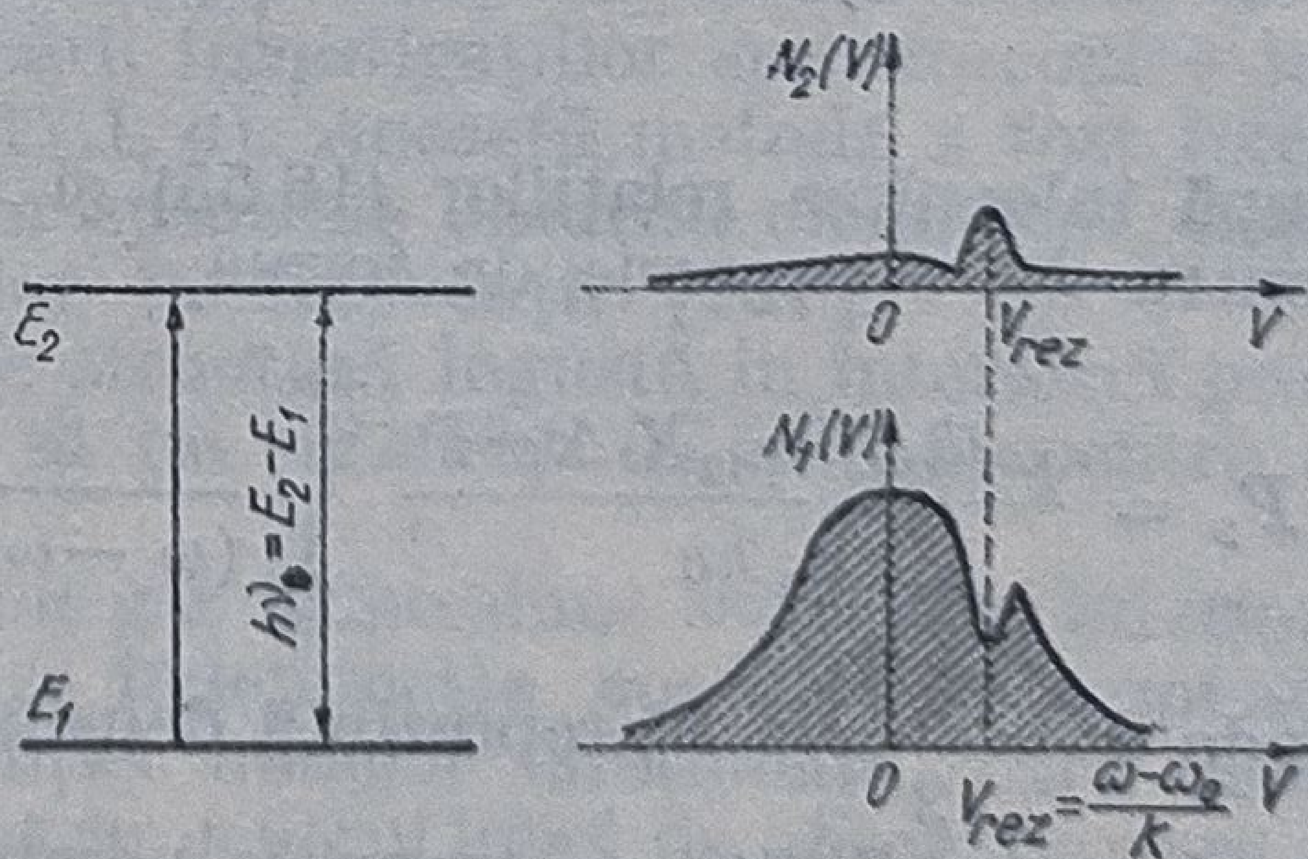


Fig. 16.5

reprezintă distribuția populațiilor pe nivelul 1 și respectiv 2 în absența cîmpului incident. Se observă că excitarea preferențială a particulelor, care au componenta vitezei $v = (\omega - \omega_0)/k$ la interacția cu un cîmp puternic, modifică distribuția particulelor la echilibru. Reprezentînd grafic populațiile $N_1(v)$ și $N_2(v)$ (fig. 16.5) se constată că fasciculul laser determină apariția unui „gol" (minim) („hole burning") în populația nivelului inferior și a unui „pic" (maxim) în cel superior (depopulare selectivă). Semilărgimea „golului" este $\frac{\Delta\omega_L}{k}$ și crește cu creșterea intensității radia-

ției de pompaj după o funcție de forma $(\gamma_{12}^2+\gamma_{12}T_1|x|^2)^{1/2}$, iar adîncimea lui după o funcție de forma $\frac{|x|^2}{\gamma_{12}^2+\gamma_{12}T_1|x|^2}$. Adîncimea „golului'' pentru nivelul 1 și înălțimea „picului'' pentru nivelul 2 nu sînt egale, fiind proporționale cu timpii de relaxare γ_1^{-1} și respectiv γ_2^{-1}.

Aceleași rezultate puteau fi obținute dacă se utilizau ecuațiile ratelor

$$\frac{dN_1(v)}{dt} = -\gamma_1[N_1(v)-N_1^0(v)] - S(v)\,\Delta N(v) \tag{16.53}$$

$$\frac{dN_2(v)}{dt} = -\gamma_2[N_2(v) - N_0^2(v)] + S(v)\Delta N(v) \tag{16.54}$$

unde

$$S(v) = \frac{\gamma_{12}|x|^2}{2}\Big/[(\omega-\omega_0-\mathbf{kv})^2+\gamma_{12}^2] \tag{16.55}$$

reprezintă probabilitatea tranzițiilor nesaturate. Astfel, populațiile celor două nivele sînt date de expresii de forma

$$N_1(v) = N_1^0(v) - \frac{1}{\gamma_1}\Delta N(v)\, S(v) \tag{16.56}$$

$$N_2(v) = N_2^0(v) + \frac{1}{\gamma_2}\Delta N(v)\, S(v) \tag{16.57}$$

iar diferența de populație este

$$\Delta N(v) = \frac{\Delta N^0(v)}{1+2T_1S(v)} \tag{16.58}$$

unde

$$N^0(v) = N_1^0(v) - N_2^0(v) = N\Delta\rho^0 f(v).$$

Rata de absorbție pe unitatea de volum este dată de relația

$$P_p = \int_{+\infty}^{-\infty} \hbar\omega\, S(v)\,\Delta N(v)\, dv. \tag{16.59}$$

După înlocuirea relațiilor (16.55) și (16.58) în relația (16.59) se obține pentru P_p o expresie de forma

$$P_p = \frac{\omega|\mathbf{d}_{12}|^2\gamma_{12}N\,\Delta\rho^0 P}{\varepsilon_0\hbar c}\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{f(v)dv}{(\omega-\omega_0-\mathbf{kv})^2+\gamma_{12}^2+\gamma_{12}T_1|x|^2} \tag{16.60}$$

unde $P = \frac{1}{2}c\,\varepsilon_0 E_0^2$ reprezintă densitatea puterii incidente. Deci, cu ajutorul probabilității de tranziție nesaturată, fenomenul de absorbție saturată a unei unde la trecerea printr-un sistem cuantic care are 2 nivele energetice, se manifestă prin apariția unui „gol'' (minim) în populația nivelului inferior și respectiv a unui „pic'' (maxim) în cel superior („hole burning'').

Fenomenul de depopulare selectivă a fost studiat prima dată de Bloembergen [148] prin metoda rezonanței magnetice și discutat în cazul undelor staționare produse cu ajutorul unui laser de către Bennett [149].

17. SPECTROSCOPIE NELINIARĂ

17.1. Spectroscopie prin absorbție saturată

Spectroscopia prin absorbție saturată s-a dezvoltat odată cu studiul interacției radiației laser cu un mediu care o amplifică (mediu activ).

Ca urmare a interacției dintre radiația laser și moleculele sau atomii unui sistem gazos se modifică distribuția particulelor după viteze.

Astfel, radiația laser determină apariția unui „gol'' în linia care urmează a fi amplificată, care are o lărgime Doppler, ceea ce conduce la o scădere a puterii la ieșire în cazul rezonanței, cînd frecvența laserului coincide cu centrul profilului Doppler. Fenomenul este cunoscut sub numele de „Lamb-dip'' și a fost pus în evidență experimental [151], cu ajutorul unei celule cu gaz la presiune scăzută (cîțiva torri) care determină, la frecvența de rezonață ν_0 saturarea absorbției undelor staționare obținute prin reflexia radiației laser pe cele două oglinzi ale cavtității (fig. 17.1, a, c).

Dacă frecvența laserului nu coincide rezonant cu frecvența de tranziție a atomilor gazului, cele două unde staționare vor determina fiecare apariția unui „gol'', în diferența populațiilor nivelelor, care vor fi simetrice față de centrul profilului Doppler (fig. 17.1, b).

Întrucît lărgimea „golului'' care apare la rezonanță în centrul liniei (care are o lărgime Doppler) este egală cu lărgimea liniei omogene 2γ (fiind mai mică decît lărgimea Doppler $\Delta\omega_D$ cu cîteva ordine de mărime) s-a creat posibilitatea aplicării investigațiilor spectroscopice în interiorul conturului Doppler (fig. 17.1, d). Această metodă a fost folosită și pentru măsurarea lărgimii liniilor spectrale datorită ciocnirilor, deplasării izotopice și stabilizarea laserilor în frecvență [147].

Pentru a obține o astfel de structură îngustă în interiorul profilului Doppler, radiația laser trebuie să fie suficient de intensă pentru a produce saturarea tranziției.

Prin plasarea unei celule cu gaz la presiune scăzută în interiorul cavității laser (fig. 17.2.a), dacă se îndeplinește condiția de rezonanță, se poate produce saturarea absorbției undelor staționare, care determină apariția unui „Lamb-dip'' îngust în centrul liniei de absorbție care are un profil Doppler. Amplificarea produsă de cele două medii este și saturată (fig. 17.2,b) și ca urmare a acestui fapt în puterea laserului la ieșire apare un maxim pronunțat, fenomenul purtînd și denumirea de „Lamb-dip'' inversat (fig. 17.2,c). Printr-o alegere potrivită a particulelor mediului gazos și a tranziției se pot obține lărgimi de ordinul 10^6Hz.

Folosirea fenomenului de saturare a absorbției în spectroscopie și în stabilizarea frecvenței laserilor este avantajoasă întrucît minimul liniei de

absorbție poate fi îngustat cu două, trei ordine de mărime mai mult decît maximul corespunzător amplificării, iar centrul liniei spectrale corespunzătoare absorbției are o frecvență stabilă.

Pentru a obține fenomenul de saturație la rezonanță în centrul unei linii de absorbție, se poate folosi o undă incidentă puternică (de pompaj) și o alta slabă, (de probare) obținută de exemplul prin reflexia celei dintîi, care se propagă în sens contrar (fig. 17.2, d). Dacă frecvența celor două unde coincide cu centrul profilului Doppler, unda de probare interacționează cu acele molecule care au determinat saturarea absorbției undei de pompaj. În spectrul de absorbție al radiației de probare se observă apariția unui minim care are lărgime omogenă și o frecvență ce coin-

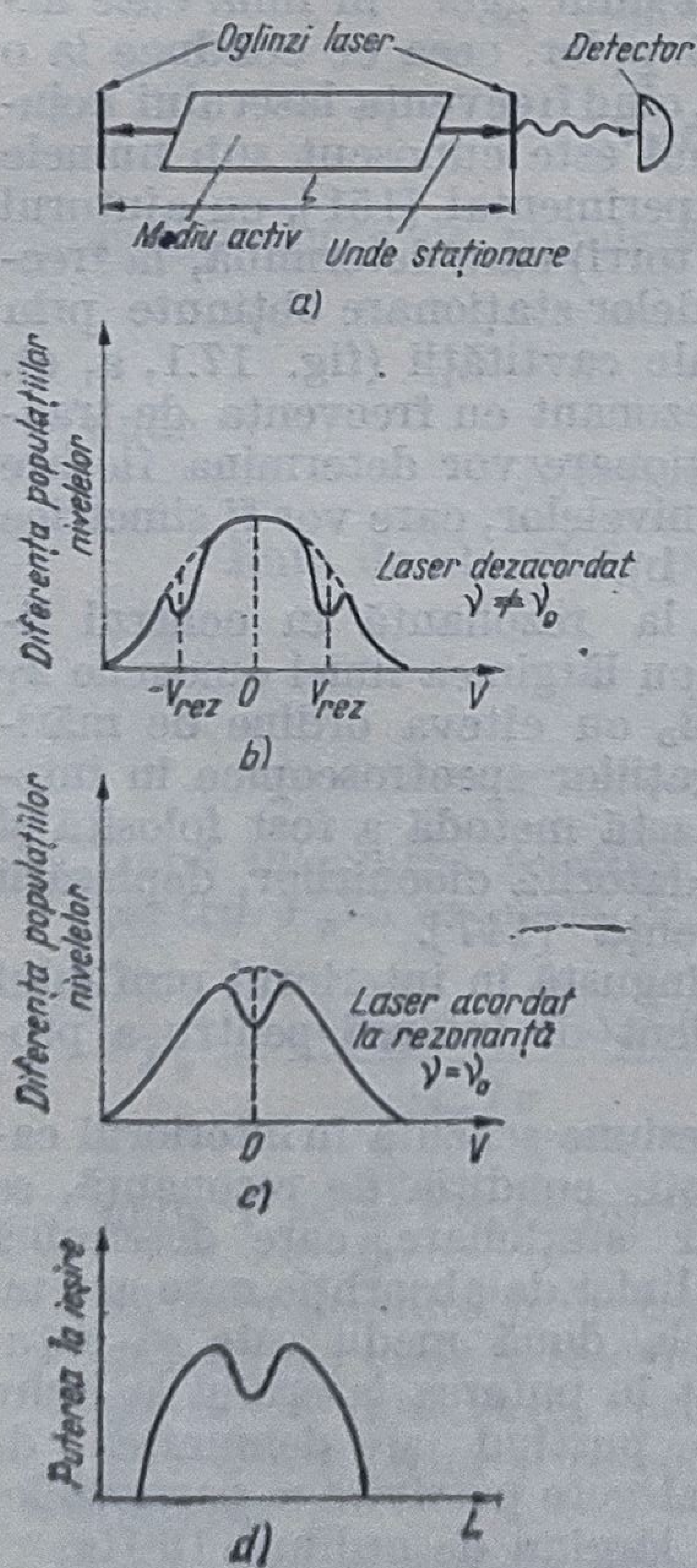


Fig. 17.1

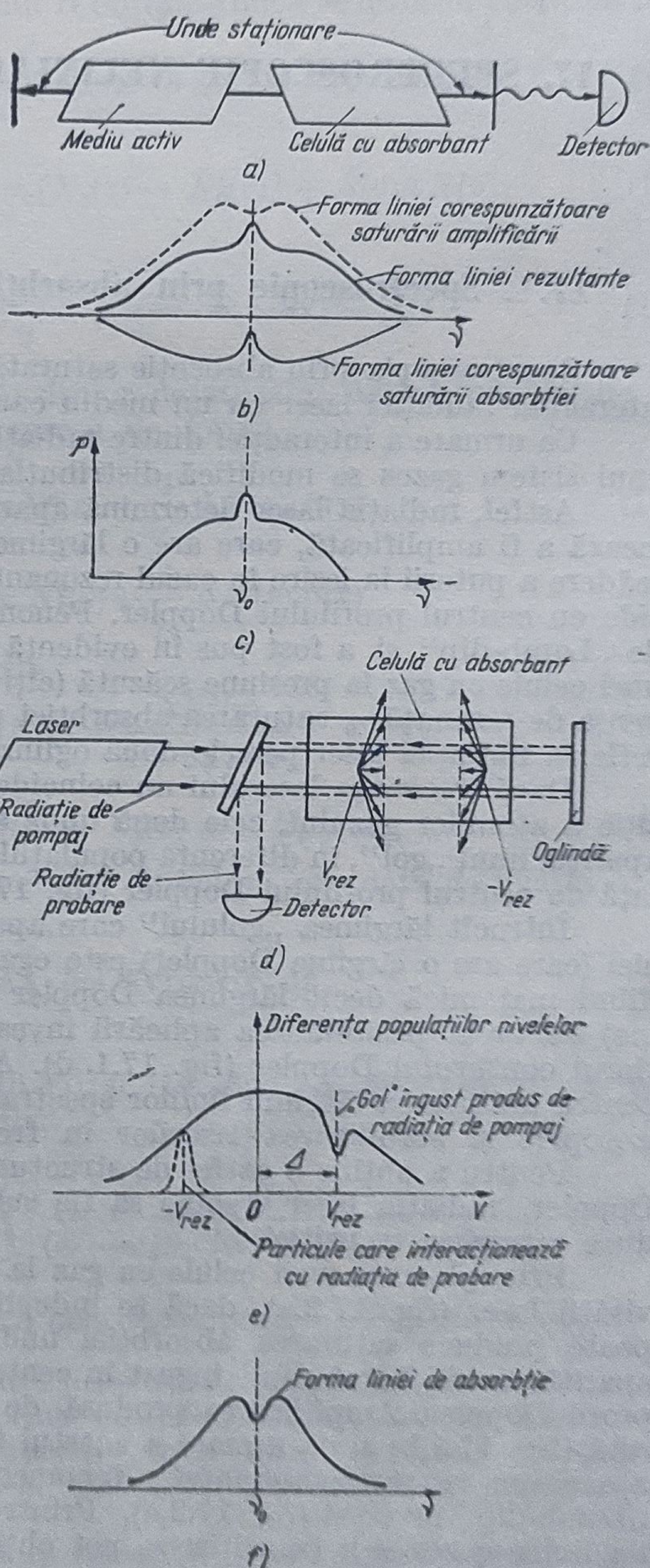


Fig. 17.2

cide rezonant cu centrul profilului Doppler (fig. 17.2, e, f) [161, 147].

Un „gol'' îngust în distribuţia particulelor după viteze se obţine şi în cazul tranziţiilor cuplate [147, 161]. Prin excitarea particulelor cu o radiaţie laser de pompaj (fig. 17.3, a), apare un maxim în distribuţia particulelor după viteze, care sînt excitate pe nivelul intermediar 2 (fig. 17.3, b, c), iar linia care corespunde tranziţiei de pe acest nivel 2 pe nive-

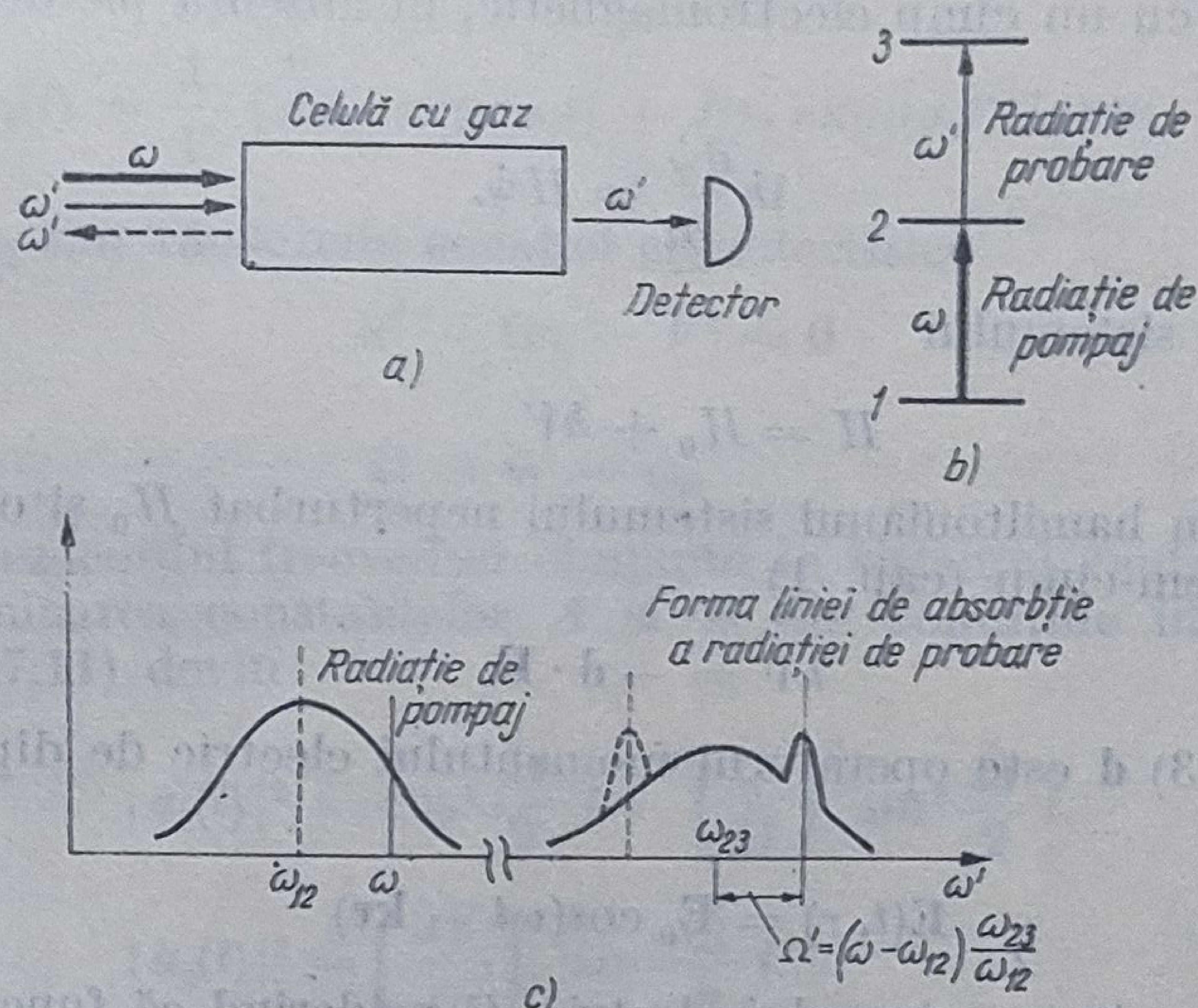


Fig. 17.3

lul superior 3 are un maxim a cărui lărgime este mai mică decît lărgimea Doppler. Forma acestei linii poate fi analizată cu ajutorul unei radiaţii de probare, care se propagă în acelaşi sens cu radiaţia de pompaj.

Dacă se utilizează unde staţionare cu frecvenţa acordată pe cea corespunzătoare centrului liniei, care are un profil Doppler, saturarea absorbţiei la rezonanţă, determină schimbarea numărului total de particule pe fiecare nivel implicat în tranziţie (fig. 17.4). Se obţine astfel un minim în populaţia nivelului superior care coincide la rezonanţă cu maximul corespunzător nivelului inferior. Determinarea populaţiilor nivelelor se poate face măsurînd intensitatea spectrului de fluorescenţă corespunzător tranziţiei de pe nivelul excitat [147, 161].

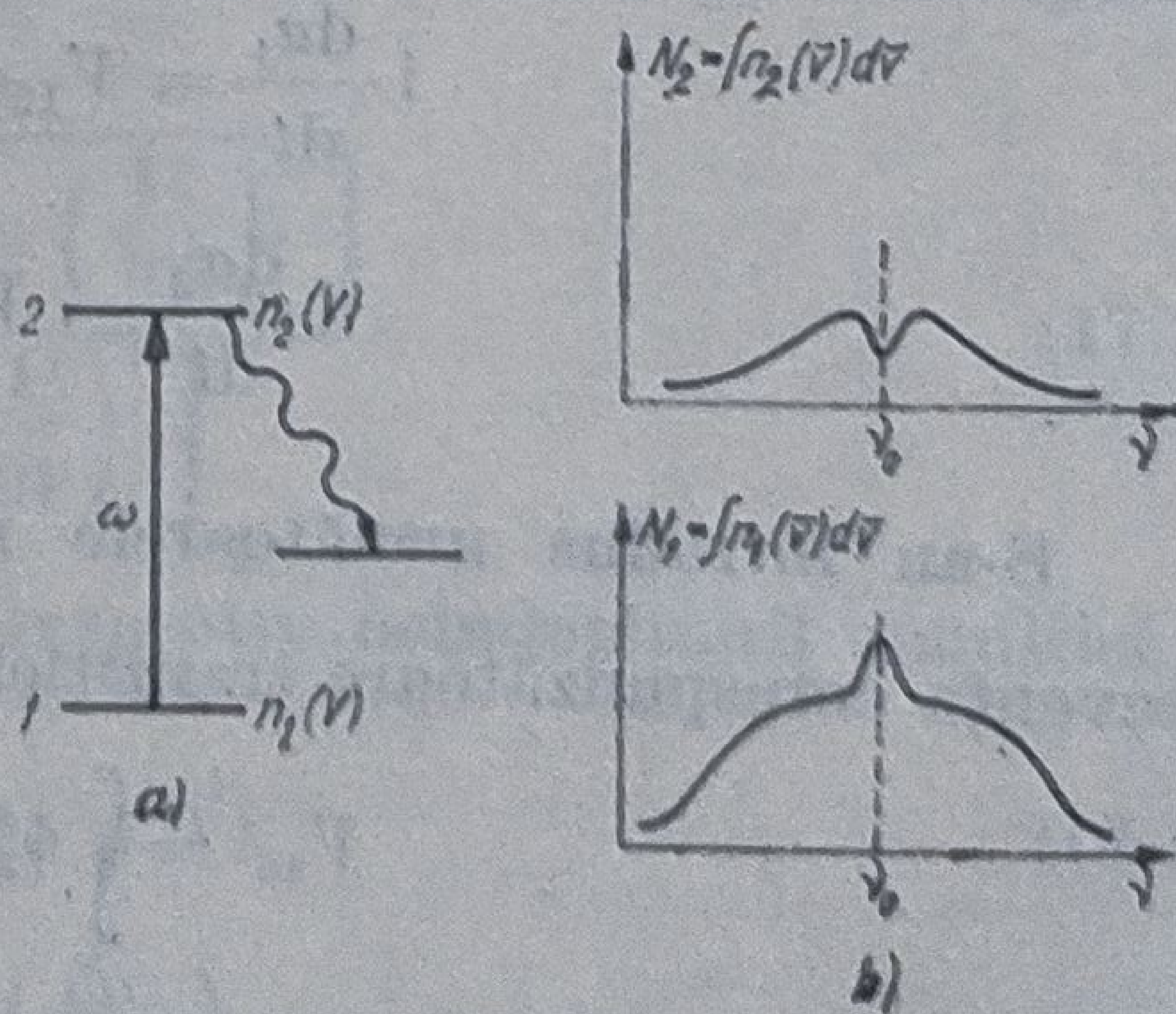


Fig. 17.4.

17.2. Teoria proceselor de interacție rezonantă dintre radiația laser și un sistem gazos cu două nivele

17.2.1 Formalismul Schrödinger

În cazul unui sistem izolat format din atomi cu numai două nivele energetice E_1 și E_2, ecuația lui Schrödinger care descrie interacția acestui sistem cu un cîmp electromagnetic, în absența pierderilor este de forma

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = H\psi. \tag{17.1}$$

Hamiltonianul sistemului

$$H = H_0 + \hbar V \tag{17.2}$$

este format din hamiltonianul sistemului neperturbat H_0 și operatorul de interacție sistem-cîmp (cap. 1)

$$\hbar V = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}. \tag{17.3}$$

În relația (17.3) **d** este operatorul momentului electric de dipol al particulei, iar

$$\mathbf{E}(t, r) = \mathbf{E}_0 \cos(\omega t - \mathbf{kr}) \tag{17.4}$$

reprezintă intensitatea cîmpului electric. Considerînd că funcția de undă care descrie sistemul cuantic aflat în interacție cu cîmpul electromagnetic are expresia

$$\psi(t) = a_1(t)\psi_1 \exp\left(-\frac{iE_1 t}{\hbar}\right) + a_2(t)\psi_2 \exp\left(-\frac{iE_2 t}{\hbar}\right) \tag{17.5}$$

unde $|a_1(t)|^2$ și $|a_2(t)|^2$ reprezintă amplitudinile probabilităților ca sistemul să se găsească în una din stările 1 sau 2, se obțin două ecuații pentru amplitudinile de probabilitate, de forma

$$i\frac{da_1}{dt} = V_{12}a_2 \exp(-i\omega_0 t) \tag{17.6}$$

$$i\frac{da_2}{dt} = V_{21}a_1 \exp(i\omega_0 t). \tag{17.7}$$

S-au introdus următoarele notații: $\omega_{21} = \frac{E_2 - E_1}{\hbar} = \omega_0$ pentru frecvența corespunzătoare tranziției între nivelele E_2 și E_1, și

$$V_{12} = \int \psi_2^* V \psi_1 \, d\tau = V_{21}^* \tag{17.8}$$

pentru elementele de matrice ale operatorului de interacție $V = \frac{\mathbf{dE}}{2\hbar}$.

Ţinînd seama că particula se află în mişcare cu viteza **v**, iar în sistemul centrului de masă, frecvenţa cîmpului este $\omega' = \omega - \mathbf{kv}$, pentru amplitudinea a_1, ecuaţiile (17.6) şi (17.7) se transformă în

$$\frac{d^2a_1}{dt^2} - i\Omega\frac{da_1}{dt} + V^2a_1 = 0. \tag{17.9}$$

Se admit pentru amplitudinile a_1 şi a_2 soluţii de forma

$$a_1(t) = A\exp(i\alpha_1 t) + B\exp(i\alpha_2 t) \tag{17.10}$$

$$a_2(t) = \frac{1}{V}[A\alpha_1\exp(i\alpha_1 t) + B\alpha_2\exp(i\alpha_2 t)][\exp(-i\Omega t)] \tag{17.11}$$

unde α_1 şi α_2 sînt rădăcinile ecuaţiei caracteristice

$$\alpha^2 - \Omega\alpha - V^2 = 0 \tag{17.12}$$

iar

$$\Omega = \omega' - \omega_0 \tag{17.13}$$

reprezintă dezacordul frecvenţei cîmpului în sistemul centrului de masă. După determinarea constantelor A şi B din condiţiile iniţiale, relaţiile (17.10) şi (17.11) devin

$$|a_1(t)|^2 = \cos^2\frac{\tilde{\Omega}}{2}t + \left(\frac{\Omega}{\tilde{\Omega}}\right)^2\sin^2\frac{\tilde{\Omega}}{2}t. \tag{17.14}$$

$$|a_2(t)|^2 = \left(\frac{2V}{\tilde{\Omega}}\right)^2\sin^2\frac{\tilde{\Omega}}{2}t. \tag{17.15}$$

Pentru determinarea constantelor A şi B din relaţiile (17.10) şi (17.11) s-a ţinut seama că la momentul iniţial ($t = 0$) sistemul se află în starea 1, adică

$$|a_1(0)|^2 = 1, \quad |a_2(0)|^2 = 0 \tag{17.16}$$

precum şi de relaţia dintre frecvenţe

$$\tilde{\Omega}^2 = \Omega^2 + (2V)^2. \tag{17.17}$$

Probabilitatea de tranziţie de pe nivelul inferior pe cel superior, definită de relaţia

$$w_{12} = \frac{\sin^2\left[Vt\sqrt{1 + \left(\frac{\Omega}{2V}\right)^2}\right]}{\left[1 + \left(\frac{\Omega}{2V}\right)^2\right]} \tag{17.18}$$

poate fi scrisă în cazul îndeplinirii şi respectiv neîndeplinirii condiţiei de rezonanţă sub forma

$$w_{12} = \sin^2 Vt, \qquad (\Omega \ll V) \tag{17.19}$$

$$w_{12} = \left(\frac{2V}{\tilde{\Omega}}\right)^2\sin^2\left(\frac{\tilde{\Omega}}{2}t\right), \qquad (\Omega \gg V). \tag{17.20}$$

Reprezentarea grafică a probabilităților de tranziție funcție de timp este dată în fig. 17.5. Dacă la momentul inițial ($t = 0$) sistemul se găsește pe nivelul superior

$$|a_1(0)|^2 = 0 \quad \text{și} \quad |a_2(0)|^2 = 0 \tag{17.21}$$

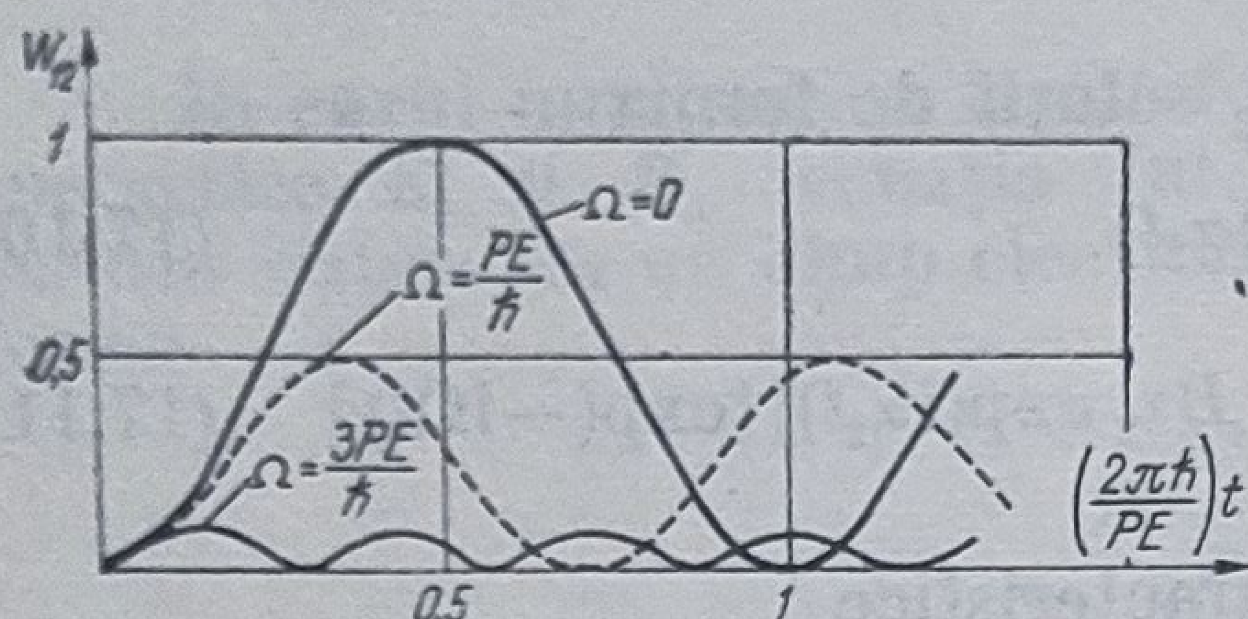


Fig. 17.5

se demonstrează că probabilitatea de tranziție pe nivelul inferior este dată de relația (17.18). Cunoscînd amplitudinile de probabilitate $a_1(t)$ și $a_2(t)$ se poate calcula dependența de timp a polarizării

$$\mathbf{P} = \int \psi^* \mathbf{d} \, \psi \, d\tau = a_2^* a_1 \mathbf{d} \, \exp(i\omega_0 t) + \\ + \text{c. c.} \tag{17.22}$$

Efectele de relaxare și pierderile trebuie luate în considerare în cazul în care interacția dintre cîmpul electromagnetic și sistemul cuantic are loc la rezonanță. Notînd cu γ_i rata de relaxare a nivelului i, datorită tranzițiilor spontane, ecuațiile pentru amplitudinile de probabilitate (17.6) și (17.7) devin

$$i\left(\frac{da_1}{dt} + \frac{\gamma_1}{2} a_1\right) = - V \exp(i\Omega t) a_2 \tag{17.23}$$

$$i\left(\frac{da_2}{dt} + \frac{\gamma_2}{2} a_2\right) = - V \exp(- i\Omega t) a_1. \tag{17.24}$$

Valorile amplitudinilor de probabilitate pot fi stabilite rezolvînd următoarea ecuație matriceală [161]

$$a(t) = S(t) \, a(t_0) \tag{17.25}$$

unde matricea $a(t)$ care determină starea sistemului la un moment dat t are forma

$$a(t) = \begin{pmatrix} a_1(t) \\ a_2(t) \end{pmatrix} \tag{17.26}$$

iar matricea S este dată de relația

$$S = \begin{pmatrix} -\dfrac{\alpha_2 + \frac{\gamma_2}{2}}{\alpha_1 - \alpha_2} e^{\alpha_1 t} + \dfrac{\alpha_1 + \frac{\gamma_2}{2}}{\alpha_1 - \alpha_2} e^{\alpha_2 t} & -\dfrac{iV}{\alpha_1 - \alpha_2}(e^{\alpha_1 t} - e^{\alpha_2 t}) \\ -\dfrac{iV}{\alpha_1 - \alpha_2}(e^{\alpha_1 t} - e^{\alpha_2 t}) e^{i\Omega t} & \left(\dfrac{\alpha_1 + \frac{\gamma_2}{2}}{\alpha_1 - \alpha_2} e^{\alpha_1 t} - \dfrac{\alpha_2 + \frac{\gamma_2}{2}}{\alpha_1 - \alpha_2} e^{\alpha_2 t}\right) e^{i\Omega t} \end{pmatrix} \tag{17.27}$$

Starea sistemului la momentul inițial t_0 este descrisă de una din matricele

$$a(t_0) = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \text{ sau } a(t_0) = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}. \tag{17.28}$$

Cunoscînd amplitudinile de probabilitate a_1 și a_2 se poate calcula amplitudinea probabilității de tranziție pe nivelul 2, ținînd seama că la momentul inițial particula se află pe nivelul inferior

$$w_{12} = \gamma_2 \int_{t_0}^{\infty} |a_2(t)|^2 \, \mathrm{d}t. \tag{17.29}$$

În urma integrării se obține relația

$$w_{12} = \frac{\gamma}{2\gamma_1} \cdot \frac{(2V)^2}{(\Omega - \mathbf{kv})^2 + \gamma^2(1 + G)} \tag{17.30}$$

unde

$$\gamma = \frac{\gamma_1 + \gamma_2}{2} \tag{17.31}$$

determină lărgimea omogenă a liniei corespunzătoare tranziției $1 \to 2$, iar

$$G = \left(\frac{dE}{\hbar}\right)^2 \frac{1}{\gamma_1\gamma_2} = \frac{(2V)^2}{\gamma_1\gamma_2} \tag{17.32}$$

este parametrul de saturație.

Probabilitatea tranziției stimulate a particulei de pe nivelul 2 pe nivelul 1 este dată de relația

$$w_{21} = \frac{\gamma_1}{\gamma_2} w_{12} \tag{17.33}$$

și este reprezentată funcție de parametrul de saturație G în fig. 17.6. La limită, cînd $G \gg 1$ (saturare puternică) valorile probabilităților devin

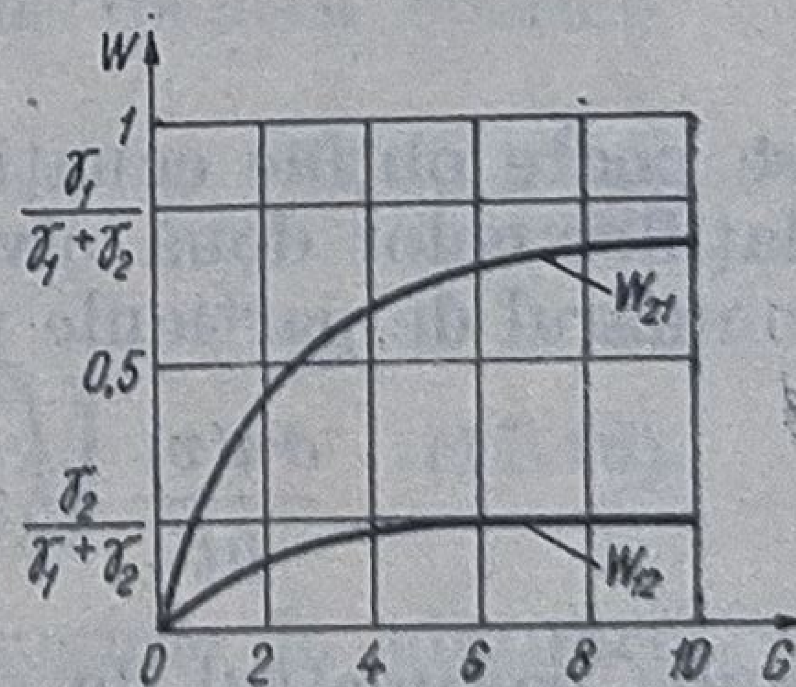


Fig. 17.6

$$w_{12} = \frac{\gamma_2}{\gamma_1 + \gamma_2} \text{ și } w_{21} = \frac{\gamma_1}{\gamma_1 + \gamma_2} \tag{17.34}$$

iar cînd $G \ll 1$ (saturare slabă), probabilitățile de tranziție sînt proporționale cu intensitatea cîmpului.

Cunoscînd valorile amplitudinilor de probabilitate se pot determina, de asemenea, condițiile în care $|a_i(t)|^2$ prezintă oscilații în timp. În cazul saturării slabe ($G \ll 1$), la rezonanță, dacă particula se află pe un nivel excitat, pentru amplitudinile de probabilitate se obțin expresiile

$$a_1(t) = -\mathrm{i}e^{-\gamma t}\sin Vt \tag{17.35}$$

$$a_2(t) = e^{-\gamma t}\cos Vt \; (\gamma = \gamma_1 = \gamma_2) \tag{17.36}$$

care pun în evidență faptul că probabilitățile de ocupare ale nivelelor 1 și 2 au valori oscilante. Deci dacă este îndeplinită condiția $2V > \gamma$, amplitudinile de probabilitate oscilează de cîteva ori în intervalul determinat de timpul de viață al particulei pe nivelul excitat. Din relația (17.34) se observă că în cazul unei saturații puternice media populației de pe nivelul cu timp de viață mai lung este mai mică decît cea de pe nivelul cu timp de viață mai scurt și că nu au loc oscilații ale amplitudinii de probabilitate. Cu toate acestea, dacă nu este îndeplinită așa numita condiție de neperiodicitate

$$G < \frac{(\gamma_1 - \gamma_2)^2}{\gamma_1 \gamma_2} = \frac{\gamma_1}{\gamma_2} \tag{17.37}$$

pot să apară oscilații ale amplitudinii de probabilitate.

17.2.2. Formalismul matricei densitate și al ecuației ratelor

Descrierea unui sistem cuantic cu două nivele energetice care interacționează cu un cîmp exterior cu ajutorul formalismului Schrödinger, implică cunoașterea stare în care se află sistemul la momentul inițial (stare „pură''). În cazul în care sistemul poate să se găsească cu o anumită probabilitate și în alte stare (stare „mixtă''), pentru a-i caracteriza evoluția se folosește formalismul matricei densitate prezentat în § 9.1 și anexa 1.

Folosirea formalismului matricei densitate mai este legată de faptul că starea inițială a sistemului nu se cunoaște cu exactitate, iar mărimile care caracterizează starea sistemului pot fi determinate experimental numai ca valori medii ale întregului ansamblu. Formalismul matricei densitate poate fi folosit la calculul polarizării mediului dar și pentru descrierea fenomenelor în care sînt implicate ciocnirile, prin luarea în considerație a constantelor de relaxare.

Ținînd seama de modelul prezentat în §9.1 și utilizînd pentru matricea care descrie fenomenele de relaxare o expresie de forma

$$(\Gamma\rho) = \begin{pmatrix} \gamma_1(\rho_{11} - \rho_{11}^0) & \gamma\rho_{12} \\ \gamma\rho_{21} & \gamma_2(\rho_{22} - \rho_{22}^0) \end{pmatrix} \tag{17.38}$$

se poate obține ecuația care descrie evoluția în timp a diferenței populațiilor celor două nivele, $n(v) = n_2(v) - n_1(v) = N_0(\rho_{11} - \rho_{22})$; ($N_0$ fiind numărul de particule pe unitatea de volum) numită și *ecuația ratelor*

$$\frac{\partial n(v)}{\partial t} + \gamma_R[n(v) - n_0(v)] = \gamma_R G L(\mathbf{kv} - \Omega) n(v) \tag{17.39}$$

unde parametrul de saturație are expresia

$$G = \frac{4V^2}{\gamma_R \gamma} = \left(\frac{d_{12}E}{\hbar}\right)\frac{1}{\gamma_R \gamma} \tag{17.40}$$

iar

$$L(x) = \frac{\gamma^2}{\gamma^2 + x^2} \tag{17.41}$$

este așa-numitul factor de formă lorentzian (cap. 1).

17.3. Calculul coeficientului de absorbție al radiației de pompaj într-un sistem cu două nivele

În cazul interacției dintre o radiație laser de pompaj și un sistem cuantic cu două nivele soluția ecuației (17.39) este

$$n(v) = \frac{n_0}{1 + \dfrac{G\gamma^2}{(\Omega - \mathbf{kv})^2 + \gamma^2}}. \tag{17.42}$$

Această soluție pune în evidență apariția în distribuția populațiilor celor două nivele a unui „gol'' (fig. 17.7), corespunzător particulelor pentru care este îndeplinită condiția de rezonanță

$$\mathbf{kv} - \omega - \omega_0 = 0. \tag{17.43}$$

Absorbția undelor electromagnetice într-un anumit mediu este caracterizată de coeficientul de absorbție pe unitatea de lungime $K(\omega)$ care este determinat de raportul dintre puterea absorbită de toate particulele din unitatea de volum și densitatea fluxului radiației incidente

$$K(\omega) = \frac{8\pi\hbar\omega}{cE^2}[Q\langle w_{12}(v)\rangle - - Q_2\langle w_{21}(v)\rangle] \tag{17.44}$$

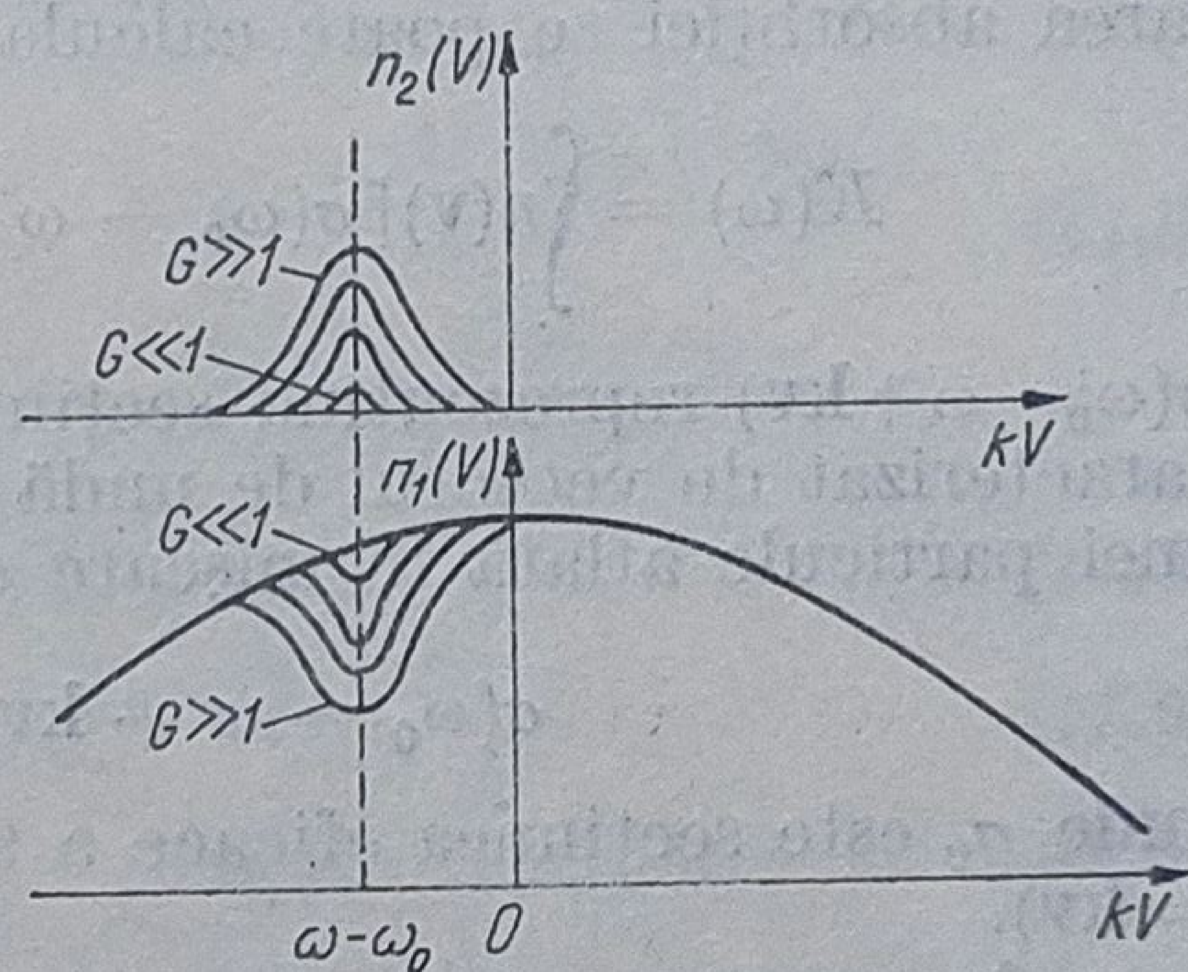


Fig. 17.7

În relația (17.44) $Q_i = N_i\gamma_i$ reprezintă numărul de particule excitate pe nivelul i pe unitatea de volum și în unitatea de timp, iar $\langle w_{12}\rangle$ și $\langle w_{21}\rangle$ sînt probabilitățile tranzițiilor induse, date de relațiile (17.30) și (17.33), mediate după funcția de distribuție după viteze [161].

La limită, cînd lărgimea liniei la rezonanță este mult mai mică decît lărgimea Doppler, adică $\gamma_B = \gamma(1 + G)^2 \ll \mathbf{kv}$, se obține pentru coeficientul de absorbție pe unitatea de lungime expresia

$$K(\omega) = K_0(\omega)\,(1 + G)^{-1/2} \tag{17.45}$$

unde

$$K_0(\omega) = \frac{1}{hu} 4\pi^{3/2} d_{21}^2\,(N_1^0 - N_2^0)\exp\left[-\left(\frac{\Omega}{ku}\right)\right]^2 \tag{17.46}$$

reprezintă coeficientul de absorbție pe unitatea de lungime în cîmpuri slabe care nu produc saturarea absorbției. În cazul cîmpurilor puternice coeficientul de absorbție are o dependență de frecvență determinată de un contur Doppler însă valoarea lui scade datorită saturației.

Cînd linia este lărgită neomogen, coeficientul de absorbție este proporțional cu $\sqrt{G}$, adică cu amplitudinea cîmpului, iar cînd linia este lărgită omogen el descrește proporțional cu G, adică cu intensitatea cîmpului. Deosebirea care apare este determinată de variația numărului de particule, funcție de intensitatea cîmpului care caracterizează interacția.

17.4. Saturarea absorbţiei undelor staţionare

Formalismul matricei densitate poate fi folosit şi pentru tratarea teoretică a fenomenului de saturare a absorbţiei determinată de undele staţionare.

În cazul unei absorbţii mai puţin intense la o frecvenţă corespunzătoare centrului profilului Doppler, fenomenul este cunoscut şi sub denumirea de „Lamb-dip'' şi a fost prezentat în §17.1. Considerînd unda staţionară plană ca rezultat al suprapunerii a două unde care se propagă în sensuri contrare

$$\mathcal{E} = E\cos(\omega t - \mathbf{kr}) + E\cos(\omega t + \mathbf{kr}) = 2E\cos\omega t\cos\mathbf{kr} \qquad (17.47)$$

se poate determina distribuţia după viteze a diferenţei populaţiilor celor două nivele, cu o relaţie similară cu (17.42) de forma

$$n(v) = n_0(v)[1 + GL(\Omega - \mathbf{kv}) + GL(\Omega + \mathbf{kv})]^{-1}. \qquad (17.48)$$

Coeficientul de absorbţie al undei staţionare care determină saturarea absorbţiei se poate calcula şi cu ajutorul relaţiei

$$K(\omega) = \int n(\mathbf{v})[\sigma(\omega_0 - \omega + \mathbf{kv}) + \sigma(\omega_0 - \omega - \mathbf{kv})]\ \mathrm{d}\mathbf{v}. \qquad (17.49)$$

$\sigma(\omega_0 - \omega + \mathbf{kv})$ reprezentînd secţiunea eficace a tranziţiei induse de cîmpul caracterizat de vectorul de undă $\mathbf{k}$ şi frecvenţă ω care acţionează asupra unei particule aflată în mişcare cu viteza $\mathbf{v}$, şi are expresia

$$\sigma(\omega_0 - \omega + \mathbf{kv}) = \sigma_0 L(\omega_0 - \omega + \mathbf{kv}) \qquad (17.50)$$

unde σ_0 este secţiunea eficace a tranziţiei induse la rezonanţă ($\omega - \omega_0 = \mathbf{kv}$).

În cazul unei absorbţii slabe, ($G \ll 1$), se obţine pentru coeficientul de absorbţie saturată a undelor staţionare o expresie de forma

$$K(\omega) = K_0(\omega)\left[1 - \frac{G}{2}\left(1 + \frac{\gamma^2}{\gamma^2 + \Omega^2}\right)\right]. \qquad (17.51)$$

Gradul absorbţiei saturate este G în centrul liniei Doppler şi $G/2$ dacă nu este îndeplinită condiţia de rezonanţă. Lărgimea „golului'' care apare în centrul liniei este 2γ.

Majoritatea experienţelor care se bazează pe fenomenul de absorbţie saturată sînt determinate de o puternică absorbţie a undelor staţionare de către atomii sau moleculele gazului dintr-o celulă plasată în interiorul cavităţii laser.

Soluţia unei astfel de probleme, care în cazul general implică folosirea calculatorului, este complicată din cauza faptului că au loc schimbări atît în forma liniei spectrale cît şi în diferenţa populaţiilor nivelelor, iar aceste modificări nu pot fi tratate decît împreună. Astfel cînd două cîmpuri cu frecvenţele ω_1 şi ω_2 interacţionează, în formula polarizării apar şi combinaţii ale frecvenţelor $\omega_1 \pm n(\omega_1 - \omega_2)$ cu $n = 1,2,3,\ldots$ Polarizarea corespunzătoare acestor noi frecvenţe conduce la o modulaţie a diferenţei de populaţie conform ecuaţiilor (16.5)—(16.7). Pentru a obţine o soluţie analitică a problemei, se consideră un caz particular în care interacţia

dintre cîmp şi sistemul cuantic cu două nivele, are loc la rezonanţă, $\omega = \omega_0$ şi constantele care determină fenomenele de relaxare sînt egale $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma$. De asemenea, dacă se neglijează neomogenităţile spaţiale ale distribuţiei diferenţei de populaţie a nivelelor, sistemul de ecuaţii (16.5)—(16.7) se poate rezolva dacă se consideră o soluţie de forma [162], [163]

$$\rho_{21} = i\, V(r_{(+)}\, e^{ikz} + r_{(-)}\, e^{-ikz}). \tag{17.52}$$

Înlocuind soluţia (17.52) în sistemul de ecuaţii (16.5)—(16.7) se obţine următorul set de ecuaţii algebrice

$$\rho_{11} - \rho_{22} = r_{(\pm)}(\gamma \pm i\,\mathbf{kv} - i\Omega) \tag{17.53}$$

$$\rho_{22} = \frac{1}{\gamma_2}|V|^2 (r^*_{(+)} + r^*_{(-)} + r_{(+)} + r_{(-)}) + \rho^0_{22} \tag{17.54}$$

$$\rho_{11} = \frac{1}{\gamma_1}|V|^2 (r^*_{(+)} + r^*_{(-)} + r_{(+)} + r_{(-)}) + \rho^0_{11}. \tag{17.55}$$

Rezolvarea acestuia conduce la următoarea expresie pentru amplitudinea elementului de matrice nediagonal

$$\rho_{21} = i(\rho^0_{11} - \rho^0_{22})\frac{V}{D}\{[\gamma - i(\mathbf{kv} - \Omega)]\cdot[\gamma^2 + (\mathbf{kv} + \Omega)^2]\times \times e^{ikz} + [\gamma - i(\mathbf{kv} + \Omega)][\gamma^2 + (\mathbf{kv} - \Omega)^2]e^{-ikz}\} \tag{17.56}$$

unde

$$D = [(\mathbf{kv})^2 + \gamma^2 a^2][(\mathbf{kv})^2 + (\gamma^2 b^2)] \tag{17.57}$$

$$a^2 = \gamma^2(1 + G) - \Omega^2 + \gamma[(\gamma G)^2 - 4\Omega^2(1 + G)]^{1/2} \tag{17.58}$$

$$b^2 = \gamma^2(1 + G) - \Omega^2 - \gamma[(\gamma G)^2 - 4\Omega^2(1 + G)]^{1/2}. \tag{17.59}$$

Folosind relaţiile (16.15)—(16.18) se poate determina coeficientul de absorbţie în cazul unei absorbţii puternice a undelor staţionare, dacă se consideră că lărgimea Doppler este mult mai mare decît cea a liniei la rezonanţă, $\mathbf{kv} \gg \gamma_B$ (unde $\gamma_B = \gamma\sqrt{1 + G}$)

$$K = K_0(\omega)\frac{\gamma}{(a+b)}\left(1 + \frac{A}{B}\right), \text{ pentru } |\gamma_B| \ll |\Omega| \tag{17.60}$$

unde
$$A = (\Omega^2 + \gamma^2)^{1/2} \tag{17.61}$$

iar
$$B = [\Omega^2 + \gamma^2(1 + 2G)]^{1/2}. \tag{17.62}$$

Dacă nu este îndeplinită condiţia de rezonanţă, expresia coeficientului de absorbţie devine

$$K(\omega) = K_0(\omega)(1 + G)^{-1/2}, \text{ pentru } |\Omega| \gg \gamma_B. \tag{17.63}$$

fiind identică cu relaţia (17.45) corespunzătoare absorbţiei unei radiaţii de pompaj aflată în interacţie cu sistemul gazos.

La rezonanţă, expresia coeficientului de absorbţie devine

$$K(\omega) = K_0(\omega)(1 + 2G)^{-1/2}, \text{ pentru } |\Omega| \ll \gamma_B. \tag{17.64}$$

O dată cu creşterea parametrului de saturaţie G coeficientul de absorbţie saturată în centrul profilului Doppler prezintă un minim, conform fig. 17.8.

Cu aujtorul relaţiei (17.60) se poate determina lărgimea „golului" $\Delta\omega$ care este prezentată în fig. 17.9, funcţie de parametrul de saturaţie G.

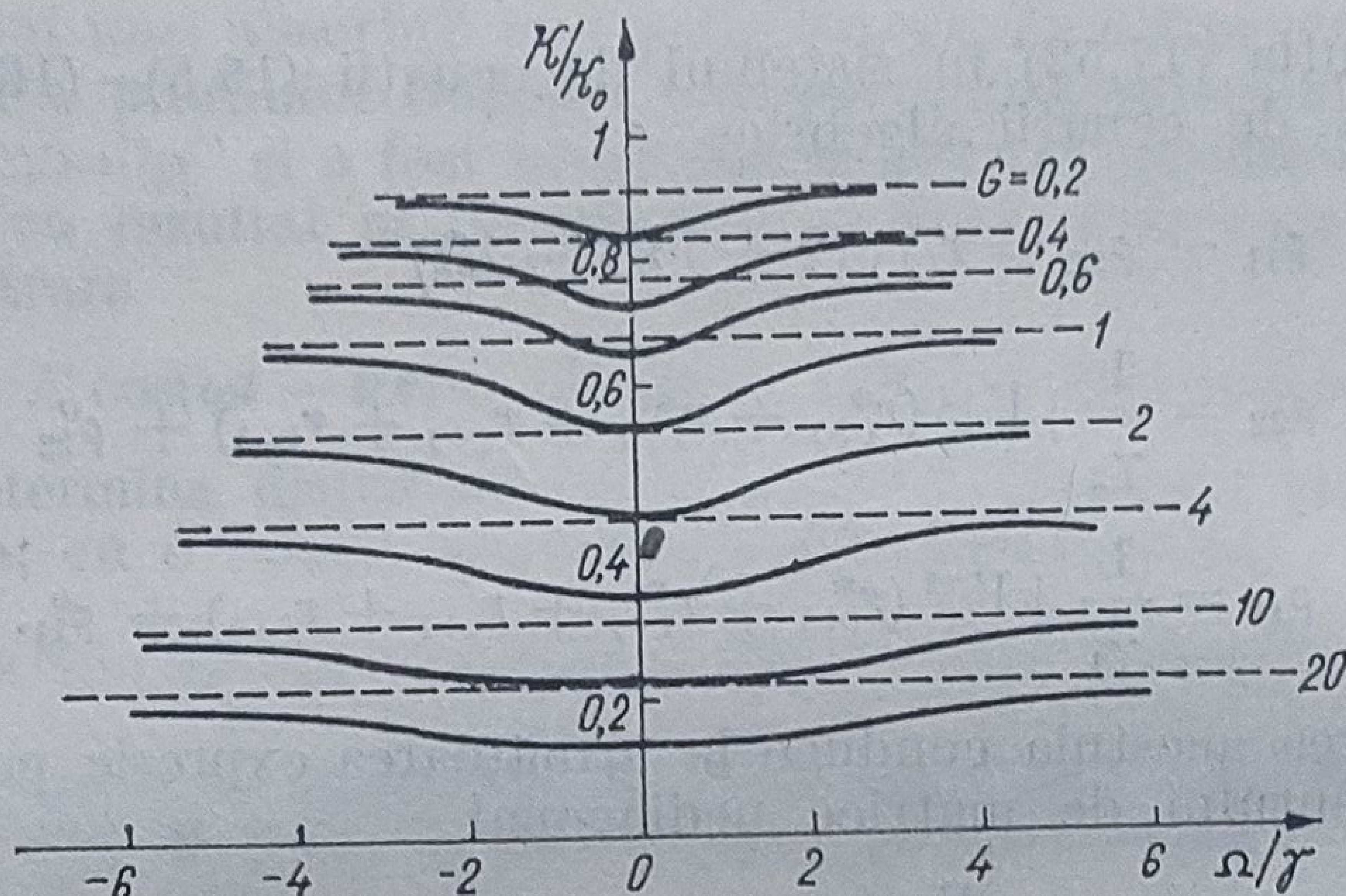


Fig. 17.8

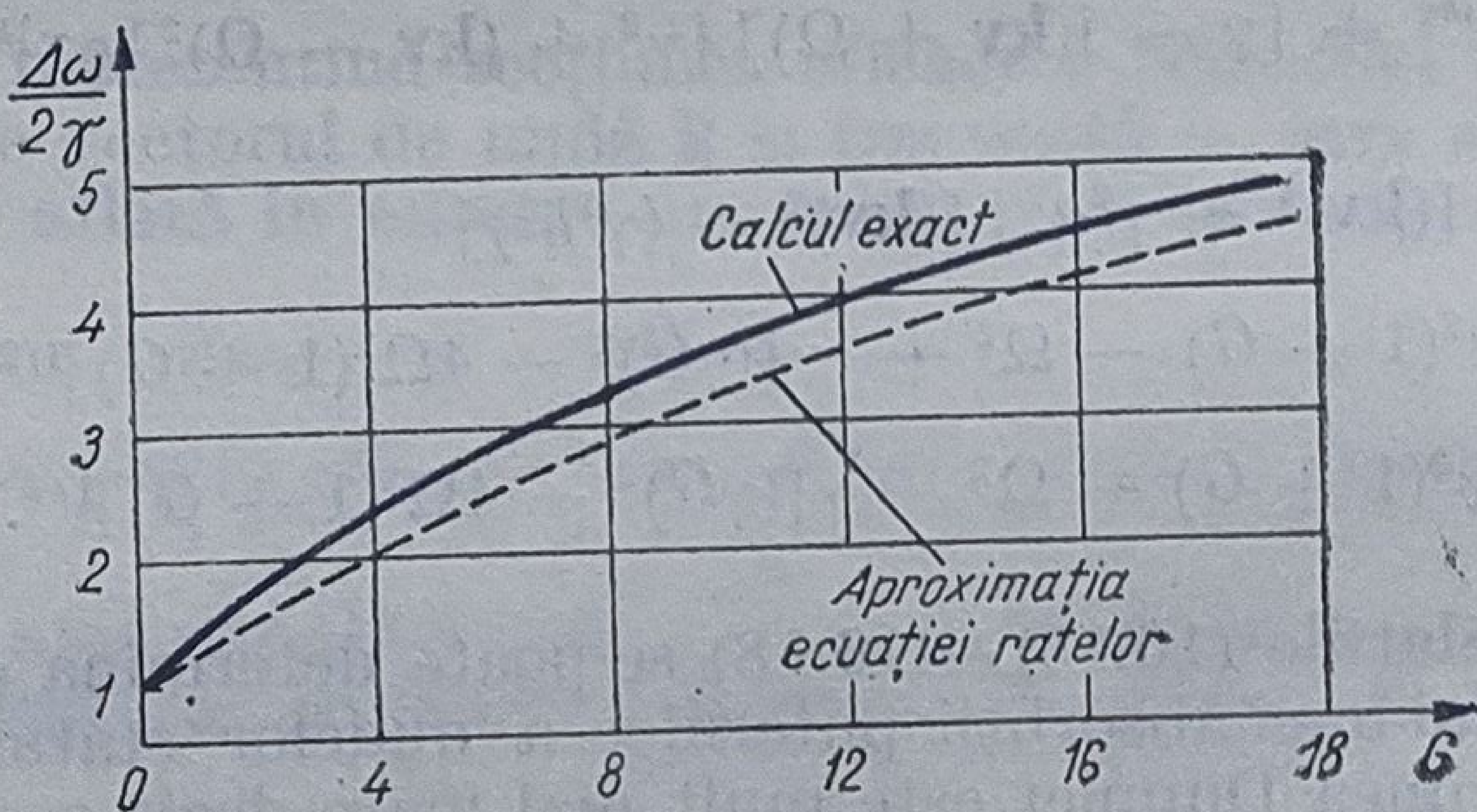


Fig. 17.9

Ţinînd seama de relaţia (16.17) şi de faptul că indicele de refracţie al mediului aflat în interacţie cu un cîmp puternic este determinat de partea reală a susceptibilităţii, se obţine pentru acesta expresia următoare

$$n(\omega) = \text{Re}\,[\chi(\omega)] = -\frac{\Omega}{\gamma}\cdot\frac{K_0}{4\pi k}\left\{\frac{2\gamma}{\sqrt{\pi}ku} - \gamma\left(1 - \frac{A}{B}\right)[(A+B)^2 - 4\Omega^2]^{-1/2}\right\}. \tag{17.65}$$

Rezultatele obţinute prin formalismele prezentate anterior pot fi utilizate la calculul caracteristicilor laserilor care urmează să fie folosiţi în montajele experimentale.

În calculele prezentate mai înainte nu s-a ţinut seama de distribuţia spaţială a cîmpului undelor staţionare şi de efectele de coerenţă care joacă un rol important în studiile privind stabilizarea oscilaţiilor corespunzătoare unei singure frecvenţe, fluctuaţiile de putere şi stabilizarea laserilor în frecvenţă.

Contribuţia efectelor de coerenţă, în cazul în care interacţionează mai multe cîmpuri, este determinată de polarizarea corespunzătoare combinaţiilor frecvenţelor. Dacă se lucrează cu două cîmpuri nu prea intense cu frecvenţele ω_1 şi ω_2 pentru simplificarea calculelor se poate lua în considerare polarizarea corespunzătoare numai primelor armonici determinate de combinaţiile frecvenţelor $\omega_1 \pm (\omega_1 - \omega_2)$.

Apariţia distribuţiei spaţiale a populaţiilor corespunzătoare armonicilor este legată de structura undei staţionare şi de mişcarea particulelor. Astfel, particulele care au proiecţia vitezei de-a lungul axei optice egală cu zero şi se află în ventrele undelor staţionare nu interacţionează cu cîmpul, densitatea lor rămînînd constantă. Particulele care se află în nodurile undelor staţionare interacţionează cu cîmpul determinînd de-a lungul axei optice o distribuţie spaţială periodică a particulelor mediului din punct de vedere al interacţiei cu cîmpul. Din cauza mişcării, particulele din noduri pot trece în ventre şi invers, astfel că mişcarea lor compensează neomogenităţile spaţiale ale mediului gazos. Neomogenităţile spaţiale ale mediului format din particule aflate în mişcare sînt puse în evidenţă dacă în calcule se iau în considerare termenii care conţin parametrul de saturaţie G la puteri pare, iar în cazul în care particulele sînt considerate fixe se iau în calcul termenii care îl conţin pe G la puterea întîi. De asemenea, dacă se ia în considerare mişcarea particulelor, saturarea diferenţei de populaţie a nivelelor devine maximă în nodurile undelor staţionare şi nu în ventre.

Contribuţiile legate de efectele de coerenţă şi de neomogenităţile spaţiale sînt maxime dacă frecvenţa cîmpului ω este acordată pe frecvenţa corespunzătoare centrului liniei care are profil Doppler pentru că în acest caz cîmpul interacţionează cu particulele care au proiecţiile vitezelor de-a lungul axului optic, foarte mici. În caz contrar, cîmpul interacţionează cu particulele care au proiecţiile vitezelor foarte mari ($v_z > \gamma/k$) şi care se pot mişca de-a lungul mai multor noduri şi ventre, fiind afectate mai mult de cîmpuri cu intensităţi medii. Atomii care au proiecţiile vitezelor mici, dau o contribuţie importantă la generarea armonicilor modulate spaţial, de ordin superior.

Pe baza modelului prezentat în lucrarea [162] coeficientul de absorbţie al undelor staţionare în centrul liniei, calculat prin metode aproximative este dat de relaţia

$$\frac{K}{K_0} = (1 + 2G)^{-1/2} + \frac{\tilde{\gamma}_{Ri}}{\gamma}(1 + 2G)^{-3/2} - \frac{\tilde{\gamma}_{Ri}}{\gamma} GA(1 + 2G)^{-2} \quad (17.66)$$

unde $$A = 1 + \frac{1}{4}P + \frac{11}{96}P^2 + \ldots, \quad P = \frac{4G^2}{(1 + 2G)^2} \quad (17.67)$$

iar $\tilde{\gamma}_{Ri} = \gamma_C + \gamma_R$, reprezintă rata totală a relaxării populaţiilor nivelului i, în care s-a ţinut seama de contribuţia ciocnirilor la fenomenele de relaxare prin intermediul termenilor γ_C şi γ_R.

Relaţia (17.66) este valabilă în cazul în care lărgimea liniei la rezonanţă este mult mai mică decît lărgimea ei Doppler ($\gamma_B \ll ku$), iar $\frac{\gamma_R}{\gamma} \times$ $\times G \ll 1$.

În relația (17.66) ultimii doi termeni sînt determinați de modulația spațială a cîmpului. Astfel, termenul al doilea este determinat de atomii care au viteza $\mathbf{kv} = \gamma_B$.

Pentru aceste valori ale vitezelor, amplitudinile armonicelor au o anumită întindere spațială, descresc cu creșterea parametrului $\frac{\tilde{\gamma}_B}{\gamma} G$, fiind necesară luarea în considerație și a armonicii de ordinul al doilea. Al treilea termen este determinat de atomii care au viteza $v = \frac{\tilde{\gamma}_B}{\gamma} u$ și care dau o contribuție negativă la absorbție. Această contribuție este legată de excesul diferenței de populație care apare în noduri, fiind echivalentă cu o descreștere a absorbției cîmpului puternic.

Pentru valori arbitrare ale intensității cîmpului nu se poate obține o soluție analitică decît dacă se lucrează la rezonanță ($\omega = \omega_0$) și cu valori egale ale ratelor de relaxare $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma$. În acest caz coeficientul de absorbție este dat de o expresie de forma [161]

$$K = \frac{K_0}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\sin^2 x}{x\left[1 + \left(1 + 4G \frac{\sin^2 x}{x^2}\right)\right]^{1/2}} \, dx. \tag{17.68}$$

Dacă nu se iau în considerare fenomenele de saturație, expresia coeficientului de absorbție devine

$$K = K_0 \left(1 - G + \frac{11}{6} G^2 - \frac{151}{36} G^3\right). \tag{17.69}$$

Pentru valori mari ale intensității cîmpului ($G \gg 1$) se obține pentru coeficientul de absorbție o expresie de forma

$$K = \frac{8K_0}{\pi^2 \sqrt{G}}. \tag{17.70}$$

Comparînd expresia coeficientului de absorbție dată de relația (17.64) și obținută cu ajutorul ecuației ratelor, cu cea din relația (17.70), se constată între ele o diferență de aproximativ 15%.

Folosind formalimul matricei densitate se poate obține cu ajutorul calculatorului o soluție numerică a sistemului de ecuații (16.5)—(16.7) [164; 165] pentru orice valori ale intensității cîmpului. Considerînd pentru energia de interacție expresia

$$hV(z,t) = -d_{12}\, 2E \sin kz \cdot \cos\omega t \tag{17.71}$$

se poate căuta o soluție a sistemului de ecuații (16.5)—(16.7) sub forma unor serii

$$\rho_{21}(v,z,t) = e^{-i\omega t} \sum_{n=0}^{\infty} [\Pi_n^{(+)}(v) e^{inkz} + \Pi_n^{(-)}(v) e^{-inkz}] \tag{17.72}$$

$$\rho_{2}(v,z,t) = \sum_{n=0}^{\infty} [a_n(v) e^{inkz} + \text{c.c.}] + \rho_{22}^0 \tag{17.73}$$

$$\rho_{11}(v,z,t) = \sum_{n=0}^{\infty} [b_n(v) e^{inkz} + \text{c.c.}] + \rho_{11}^0. \tag{17.74}$$

În urma înlocuirii relațiilor (17.72)—(17.74) în (16.5)—(16.7) și medierii după viteze, se obține polarizarea mediului sub forma

$$P(z,t) = \mathrm{Re} \sum_{n=1,3,5}^{\infty} (\chi_n^{(+)} \sin nkz + i\chi_n^{(-)} \cos nkz) 2E\, e^{i\omega t} \quad (17.75)$$

unde $\chi_n^{(\pm)}$ reprezintă susceptibilitatea mediului corespunzătoare armonicilor. Mediind pe întregul volum al mediului de interacție cu lungimea L, ($L \gg \lambda$), rezultă

$$P(t) = \frac{1}{L} \int_0^L P(z,t) \sin kz dz = \mathrm{Re}(\bar{\chi} 2E\, e^{i\omega t}). \quad (17.76)$$

Părțile reală și imaginară ale susceptibilității sînt date de relațiile

$$\mathrm{Re}\{\bar{\chi}\} = \chi_0 \left(\frac{2\hbar ku}{\sqrt{\pi}\, d_{12} E} \right) (\omega_0 - \omega) \mathrm{Re} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{w(v) y_1 dv}{\gamma + ikv} \quad (17.77)$$

$$\mathrm{Im}\{\bar{\chi}\} = -\chi_0 \left(\frac{\hbar\, ku}{\sqrt{\pi}\, d_{12} E} \right) \mathrm{Re} \int_{-\infty}^{+\infty} w(v) y_1\, dv \quad (17.78)$$

unde s-au introdus următoarele notații

$$\chi_0 = \frac{d_{12}^2 N_0}{\hbar\, ku} \sqrt{\pi} \quad (17.79)$$

$$\begin{cases} y_n = \dfrac{d_{12} E}{2\hbar R_n} (y_{n+1} - y_{n-1}) & (17.80a) \\[2ex] y_0 = \dfrac{d_{12} E}{\hbar} \cdot \dfrac{\gamma_R}{\gamma_1 \gamma_2} (y_1 + y_1^*) + 1 & (17.80b) \end{cases}$$

$$\frac{1}{R_n} = \begin{cases} \dfrac{1}{\gamma_1 + inkv} + \dfrac{1}{\gamma_2 + inkv}, & n = 0,2,4,\ldots \\[2ex] \dfrac{1}{\gamma_R + i(nkv - \Omega)} + \dfrac{1}{\gamma_R + i(nkv + \Omega)}, & n = 1,3,5. \end{cases} \quad (17.81)$$

Funcție de parametrul de saturație, părțile reală și imaginară ale susceptibilității sînt prezentate în fig. 17.10 și 17.11. Din soluțiile reprezentate grafic se observă că în ceea ce privește forma „Lamb-dip”-ului nu există deosebiri calitative în comparație cu cea obținută folosind ecuațiile ratelor.

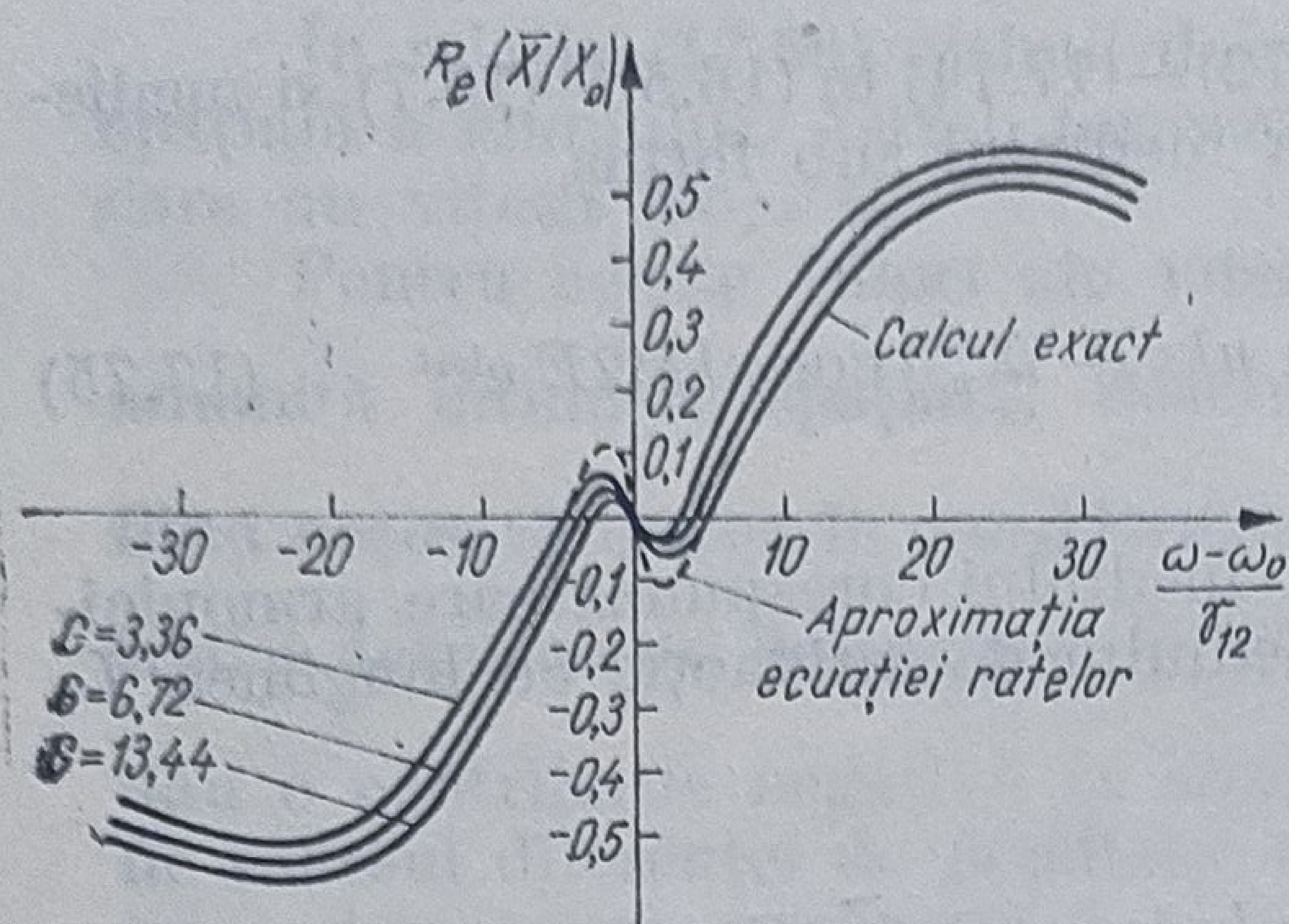


Fig. 17.10

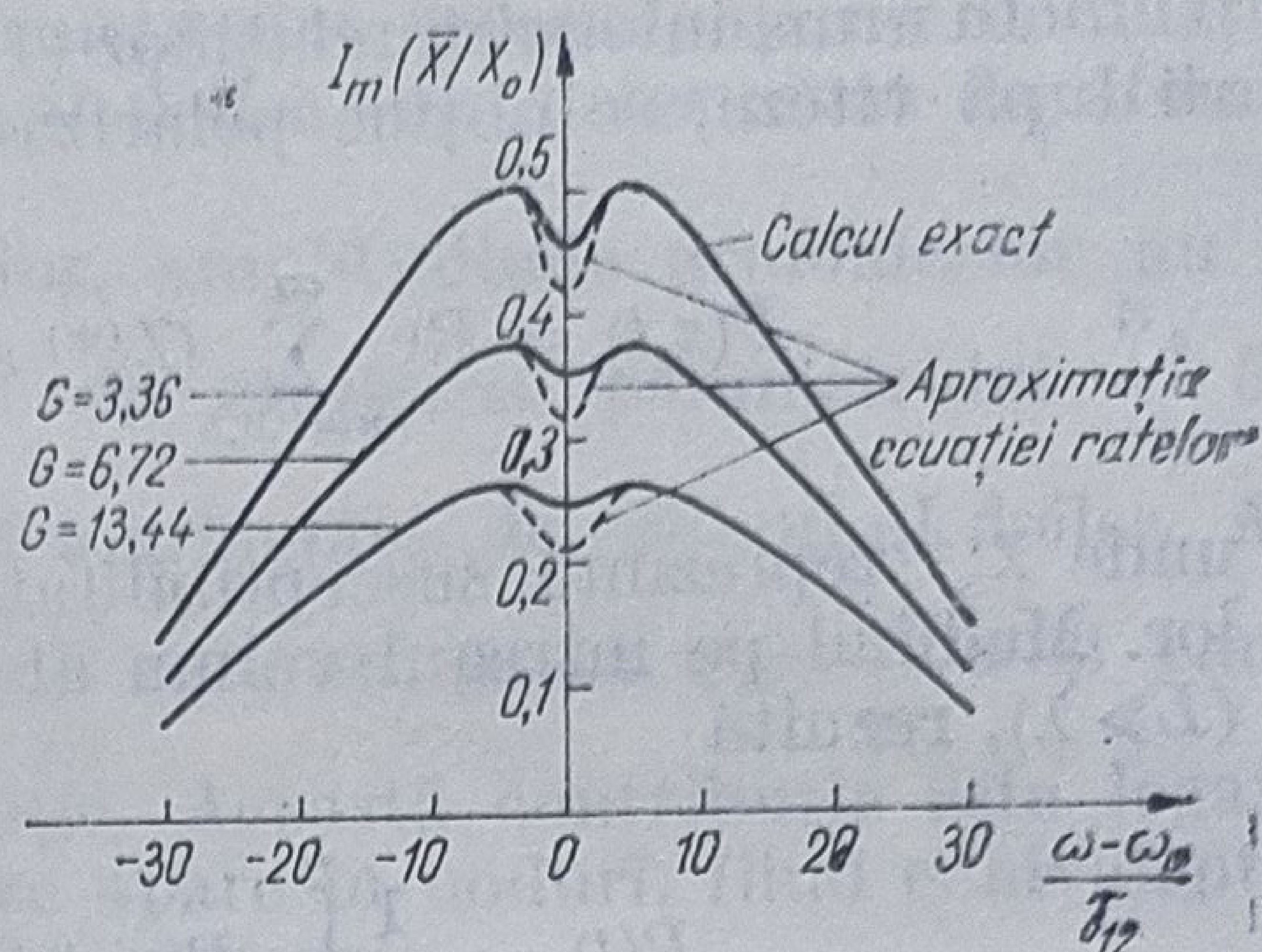


Fig. 17.11

Pentru cîmpuri puternice, adîncimea „golului'' descrește cu aproximativ 20% în comparație cu cea calculată din relația (17.60) în aproximația ecuațiilor ratelor (linia punctată).

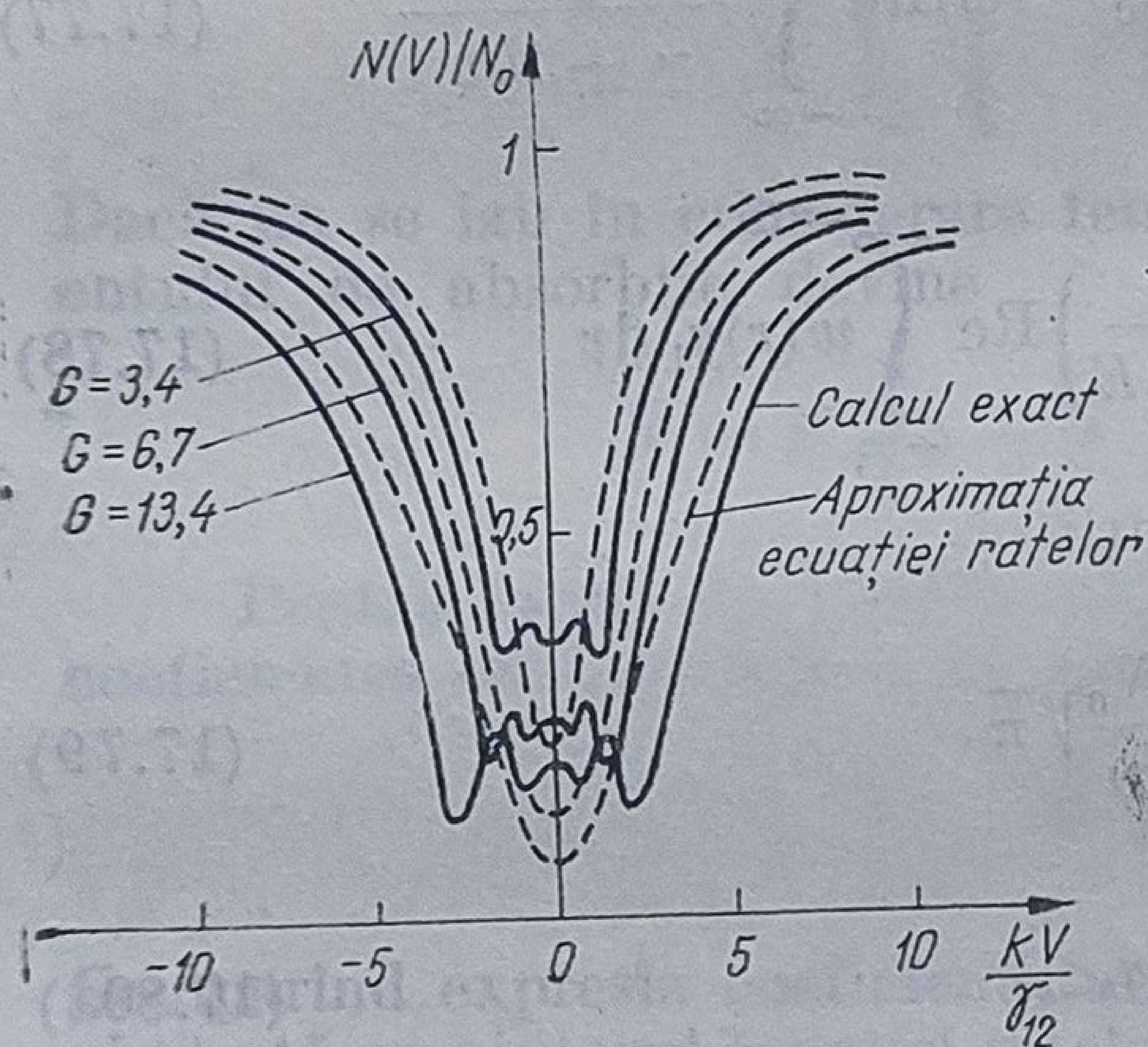


Fig. 17.12

În figura 17.12 este prezentată distribuția diferenței de populație mediată spațial pe volumul mediului de interacție funcție de proiecția vitezei atomilor pe direcția undelor staționare, pentru diferite grade de saturație. Apariția unui „gol'' adițional în distribuția după viteze se datorește mișcării particulelor cu viteze $v_z \ll \gamma/k$, după o direcție paralelă cu suprafețele de undă ale undelor staționare atît prin noduri cît și prin ventre.

O bună parte din aceste particule rămîn în interiorul nodurilor undelor staționare și nu mai contribuie la fenomenele de saturație.

În același timp, particulele care au vitezele $v \geqslant \gamma/k$ trec prin nodurile și ventrele undelor staționare și interacționează cu cîmpul, determinînd o saturare puternică.

Aceste anomalii nu apar în aproximația ecuațiilor ratelor dacă nu se iau în considerare efectele de saturație.

17.5. Interacția unui sistem gazos cu două unde de aceeași frecvență și amplitudini diferite care se propagă în sensuri contrare

Efectele de coerență joacă un rol important și în cazul în care se consideră interacția dintre particulele mediului cu un cîmp obținut prin suprapunerea a două cîmpuri de aceeași frecvență dar de amplitudini

diferite

$$E(t) = E_0 \cos(\omega t + kr) + E \cos(\omega t - kr). \tag{17.82}$$

Radiația de pompaj cu amplitudinea E produce saturarea absorbției, în timp ce unda de probare cu amplitudinea E_0 care se propagă în sens contrar este mult mai slabă și interacționează liniar cu acele sisteme care au frecvența $\omega_0 + (\omega_0 - \omega)$. Astfel, transmisia corespunzătoare undei de probare crește cînd frecvența undei este acordată pe frecvența corespunzătoare centrului liniei, ea interacționînd cu acele particule care au fost saturate direct de radiația de pompaj.

În primă aproximație, pentru calculul coeficientului de absorbție se folosește formalismul ecuației ratelor și se ia în considerare numai distribuția după viteze a populațiilor nivelelor, neținîndu-se seama de efectele de coerență.

Sub acțiunea radiației de pompaj are loc o modificare a distribuției cu viteza a diferenței populațiilor nivelelor $n(v)$ dată de relația (17.42). Coeficientul liniar de absorbție pentru unda de probare este dat de relația

$$K(\omega) = \int \sigma(\mathbf{v}, \omega) n(\mathbf{v}) d\mathbf{v} \tag{17.83}$$

unde
$$\sigma(\mathbf{v}, \omega) = \sigma_0 \frac{\gamma^2}{(\omega - \omega_0 + \mathbf{kv})^2 + \gamma^2} \tag{17.84}$$

reprezintă secțiunea eficace a tranziției induse de cîmpul $E_0 \cos(\omega t + \mathbf{kr})$ asupra unei particule cu viteza $\mathbf{v}$, iar

$$\sigma_0 = \frac{4\pi\omega\, d_{12}^2}{ch\gamma} \tag{17.85}$$

este secțiunea eficace a tranziției la rezonanță. Înlocuind (17.85) și (17.42) în (17.83) se obține pentru coeficientul de absorbție expresia

$$K(\omega) = K_0(\omega)\left[1 - \left(1 - \frac{1}{\sqrt{1+G}}\right) L\left(2\frac{\omega - \omega_0}{\tilde{\gamma}}\right)\right] \tag{17.86}$$

unde $\tilde{\gamma} = \gamma(1 + \sqrt{1+G})$. Se observă că lărgimea „golului" este egală cu semisuma dintre lărgimea „golului" determinat de radiația de pompaj, $2\gamma\sqrt{1+G}$ și lărgimea omogenă 2γ care corespunde ecartului de frecvență în intervalul căruia are loc interacția cu unda de probare.

De fapt, radiația de pompaj determină schimbări în diferența populațiilor nivelelor astfel că forma liniei se schimbă și trebuie luate în considerare și efectele de coerență. Pentru aflarea expresiei coeficientului de absorbție al undei de probare se folosește în acest caz formalismul matricei densitate [166] (anexa 1).

Considerînd cazul general cînd radiația de pompaj E are frecvența ω, iar cea de probare ω', ecuațiile care descriu comportarea sistemului sînt următoarele

$$\frac{\partial \rho_{21}}{\partial t} + (i\omega_0 + \gamma)\rho_{21} = i(Ve^{-i\omega t} + V_0 e^{-i\omega' t})(\rho_{11} - \rho_{22}) \tag{17.87}$$

$$\frac{\partial \rho_{11}}{\partial t} + \gamma_1(\rho_{11} - \rho_{11}^0) = -i(Ve^{-i\omega t} + V_0 e^{-i\omega' t})\rho_{21}^* + \text{c.c.} \tag{17.88}$$

$$\frac{\partial \rho_{22}}{\partial t} + \gamma_2(\rho_{22} - \rho_{22}^0) = i(Ve^{-i\omega t} + V_0 e^{-i\omega' t})\rho_{21}^* + \text{c.c.} \tag{17.89}$$

unde

$$V = \frac{d_{12}E}{2h} \text{ iar } V_0 = \frac{d_{12}E_0}{2h} \tag{17.90}$$

Ținînd seama că amplitudinea undei de probare E_0 este mult mai mică decît cea a radiației de pompaj, ecuațiile (17.87) — (17.89) pot fi rezolvate folosind metoda perturbațiilor, admițînd pentru elementele de matrice ale operatorului densitate dezvoltări de forma

$$\rho_{nn} = r_n + i\, C_n V_0\, e^{-i\Delta t} + i\, C_n^* V_0 e^{i\Delta t} \tag{17.91}$$

unde $\Delta = \omega' - \omega$, iar $n = 1; 2$.

Calculele sînt destul de laborioase, însă dacă se consideră că saturarea tranzițiilor determinate de unda de probare este slabă și lărgirea datorată efectului Doppler este suficient de mare, expresiile obținute pentru coeficientul de absorbție al undei de probare sînt relativ simple.

În cazul în care cele două unde nu interacționează ($\Delta \gg \gamma_B$) coeficientul de absorbție al undei de probare este egal cu cel corespunzător absorbției nesaturate. Dacă se ține seama că unda de probare interacționează cu aceleași particule cu care interacționează și radiația de pompaj, ($\Delta \ll \gamma_B$) se obține pentru coeficientul de absorbție al undei de probare următoarea expresie

$$K_{(-)}(\omega) = K_0 \exp\left[-\left(\frac{\Omega}{ku}\right)^2\right]\left[1 - \frac{b\tilde{\gamma}^2}{(\Delta + 2\Omega)^2 + \tilde{\gamma}^2}\right] + $$

$$+ 4|V|^2 \frac{\gamma_B - \gamma}{\gamma_B} \operatorname{Re}\left[-\frac{f(\Omega + \frac{\Delta}{2} + i\gamma_B)}{2\Omega + \Delta + i(\gamma_B + \gamma)}\right] \tag{17.92}$$

unde $$b = \frac{G}{1 + G + \sqrt{1 + G}}\ ;\ \tilde{\gamma} = \gamma(1 + \sqrt{1 + G}) \tag{17.93}$$

iar funcția $f(x)$ este dată de relația

$$f(x) = \left[3x - \left(\Omega + \frac{\Delta}{2}\right) + i\gamma\right](x + i\gamma)\left(2x + i\frac{\gamma_1 + \gamma_2}{2}\right)\left[\left(3x - \left(\Omega + \frac{\Delta}{2}\right) + \right.\right.$$

$$\left. + i\gamma\right)\left(x + \Omega + \frac{\Delta}{2} + i\gamma\right)(2x + i\gamma_2)(2x + i\gamma_1) - 4|V|^2(2x + i\gamma) \times$$

$$\left.\times\left(2x + i\frac{\gamma_1 + \gamma_2}{2}\right)\right]^{-1}. \tag{17.94}$$

Primul termen al relației (17.92) coincide cu cel obținut în aproximația ecuațiilor ratelor și este determinat de schimbarea distribuției cu viteza a diferenței populațiilor, iar al doilea termen pune în evidență efectele de coerență care pot îngusta sau lărgi suplimentar linia din cauza oscilațiilor coerente care pot avea loc sub acțiunea radiației de pompaj („nutații optice").

$$\frac{\partial \rho_{22}}{\partial t} + \gamma_2(\rho_{22} - \rho_{22}^0) = \mathrm{i}(V\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega t} + V_0\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega' t})\,\rho_{21}^* + \mathrm{c.c.} \tag{17.89}$$

unde

$$V = \frac{d_{12}E}{2h} \text{ iar } V_0 = \frac{d_{12}E_0}{2h} \tag{17.90}$$

Ţinînd seama că amplitudinea undei de probare E_0 este mult mai mică decît cea a radiaţiei de pompaj, ecuaţiile (17.87) — (17.89) pot fi rezolvate folosind metoda perturbaţiilor, admiţînd pentru elementele de matrice ale operatorului densitate dezvoltări de forma

$$\rho_{nn} = r_n + \mathrm{i}\, C_n V_0 \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\Delta t} + \mathrm{i}\, C_n^* V_0 \mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta t} \tag{17.91}$$

unde $\Delta = \omega' - \omega$, iar $n = 1; 2$.

Calculele sînt destul de laborioase, însă dacă se consideră că saturarea tranziţiilor determinate de unda de probare este slabă şi lărgirea datorată efectului Doppler este suficient de mare, expresiile obţinute pentru coeficientul de absorbţie al undei de probare sînt relativ simple.

În cazul în care cele două unde nu interacţionează ($\Delta \gg \gamma_B$) coeficientul de absorbţie al undei de probare este egal cu cel corespunzător absorbţiei nesaturate. Dacă se ţine seama că unda de probare interacţionează cu aceleaşi particule cu care interacţionează şi radiaţia de pompaj, ($\Delta \ll \gamma_B$) se obţine pentru coeficientul de absorbţie al undei de probare următoarea expresie

$$K_{(-)}(\omega) = K_0 \exp\left[-\left(\frac{\Omega}{ku}\right)^2\right]\left[1 - \frac{b\tilde{\gamma}^2}{(\Delta + 2\Omega)^2 + \tilde{\gamma}^2}\right] + 4|V|^2 \frac{\gamma_B - \gamma}{\gamma_B} \mathrm{Re}\left[-\frac{f(\Omega + \frac{\Delta}{2} + \mathrm{i}\,\gamma_B)}{2\Omega + \Delta + \mathrm{i}(\gamma_B + \gamma)}\right] \tag{17.92}$$

unde

$$b = \frac{G}{1 + G + \sqrt{1 + G}}\ ; \ \tilde{\gamma} = \gamma\,(1 + \sqrt{1 + G}) \tag{17.93}$$

iar funcţia $f(x)$ este dată de relaţia

$$f(x) = \left[3x - \left(\Omega + \frac{\Delta}{2}\right) + \mathrm{i}\gamma\right](x + \mathrm{i}\gamma)\left(2x + \mathrm{i}\frac{\gamma_1 + \gamma_2}{2}\right)\left[\left(3x - \left(\Omega + \frac{\Delta}{2}\right) + \mathrm{i}\gamma\right)\left(x + \Omega + \frac{\Delta}{2} + \mathrm{i}\gamma\right)(2x + \mathrm{i}\gamma_2)\,(2x + \mathrm{i}\gamma_1) - 4|V|^2(2x + \mathrm{i}\gamma) \times \left(2x + \mathrm{i}\frac{\gamma_1 + \gamma_2}{2}\right)\right]^{-1}. \tag{17.94}$$

Primul termen al relaţiei (17.92) coincide cu cel obţinut în aproximaţia ecuaţiilor ratelor şi este determinat de schimbarea distribuţiei cu viteza a diferenţei populaţiilor, iar al doilea termen pune în evidenţă efectele de coerenţă care pot îngusta sau lărgi suplimentar linia din cauza oscilaţiilor coerente care pot avea loc sub acţiunea radiaţiei de pompaj („nutaţii optice").

Forma liniei de absorbţie a undei de probare este prezentată în fig. 17.13, atît în aproximaţia ecuaţiei ratelor (curba punctată) cît şi ţinînd seama de efectele de coerenţă (curba continuă).

Din figura 17.14, unde este prezentată dependenţa lărgimii liniei de absorbţie a undei de probare $\Delta\omega$ funcţie de parametrul de saturaţie G, se observă că aportul efectelor de coerenţă este proporţional cu parametrul γ_R/γ, apărînd ca un efect de ordinul al doilea.

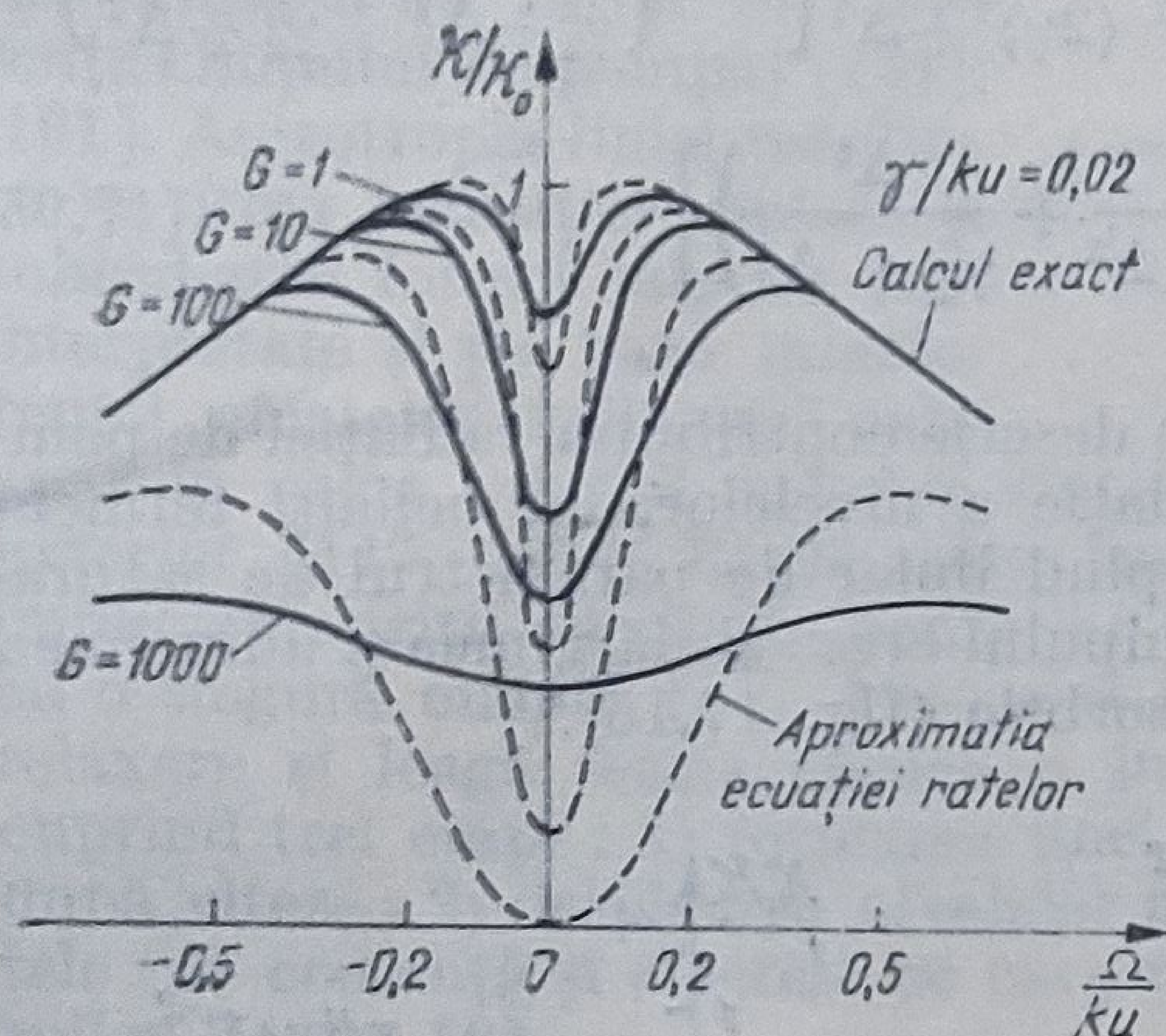


Fig. 17.13

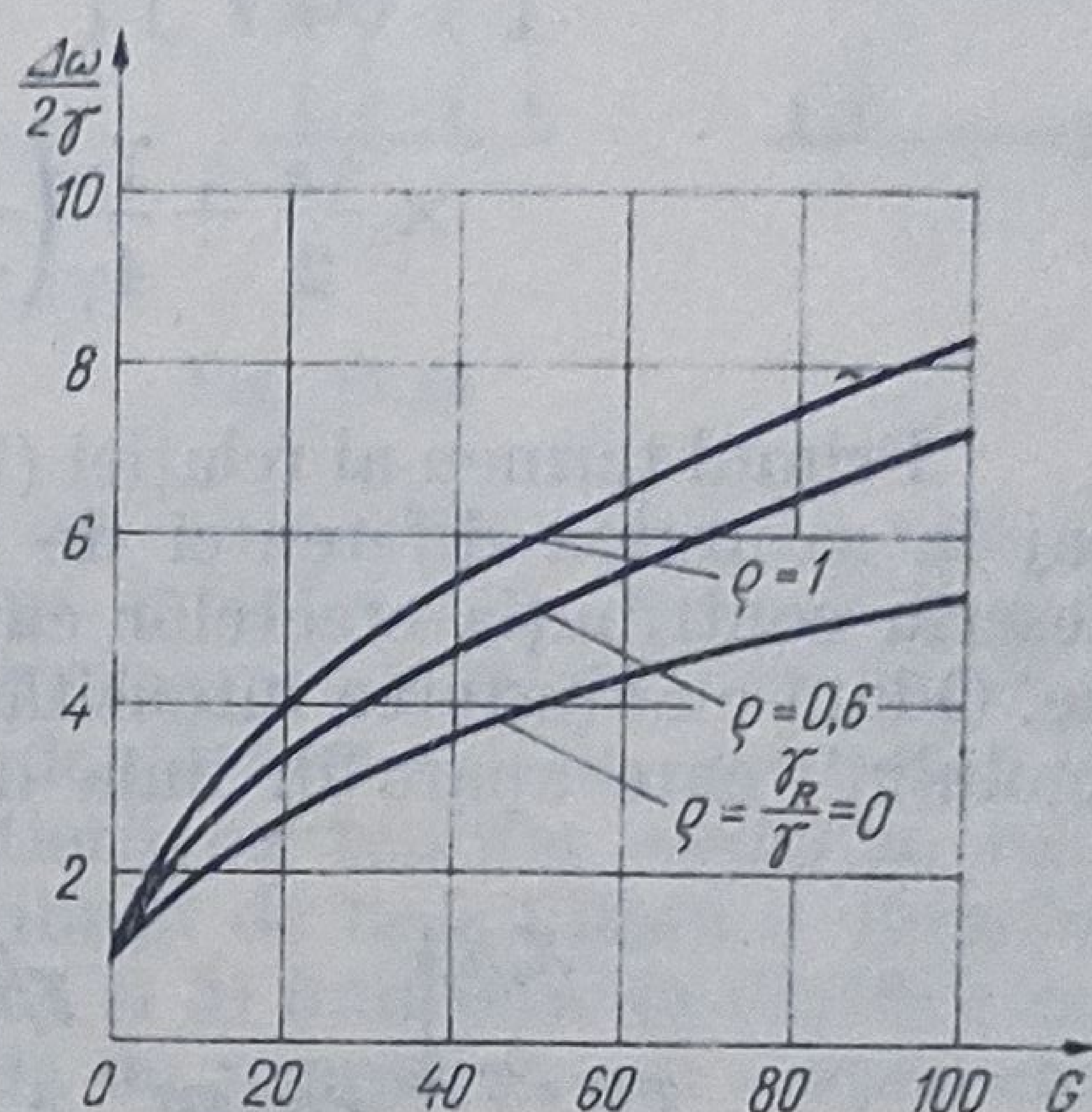


Fig. 17.14

Caracteristicile care pun în evidenţă absorbţia undei de probare apar numai în cazul în care lărgimea liniei datorată efectului Doppler este cu mult mai marede cît lărgimea omogenă γ. Dacă ele devin comparabile, pentru anumite valori ale frecvenţei, absorbţia îşi schimbă semnul şi astfel unda de probare este amplificată.

17.6. Rezonanţe înguste obţinute cu ajutorul a două unde unidirecţionale de amplitudini diferite

Considerăm două unde cu frecvenţele apropiate ω_1 şi ω_2 care prin suprapunere dau naştere unei unde a cărei amplitudine variază cu o frecvenţă $\Delta = |\omega_1 - \omega_2|$. Dacă radiaţia de pompaj este suficient de intensă, ea produce o modulaţie a diferenţei de populaţie care la rîndul ei determină modulaţia coeficientului de absorbţie şi a amplitudinii undei de probare. Adîncimea modulaţiei diferenţei de populaţie depinde de relaţia dintre frecvenţa modulatoare Δ şi de ratele de dezexcitare γ_1 şi γ_2 ale celor două nivele energetice implicate. Dacă Δ este mult mai mică decît ratele γ_1 şi γ_2, diferenţa de populaţie urmăreşte variaţia amplitudinii cîmpului rezultat prin compunerea undelor de frecvenţe ω_1 şi ω_2, iar efectul de modulaţie al amplitudinii semnalului este maxim. În caz contrar, mediul nu mai are timp să răspundă variaţiilor amplitudinii cîmpului şi se poate înregistra numai variaţia medie a populaţiei nivelului. Ca urmare a legăturii dintre modulaţia şi populaţia nivelelor investigate, metoda este utilizată la măsurarea timpilor de viaţă ai nivelelor excitate.

Coeficientul de absorbţie al undei de probare $K_{(+)}$ la frecvenţa ω', poate fi determinat cu ajutorul relaţiilor (17.87)—(17.89) dacă se înlocuieşte frecvenţa radiaţiei de pompaj ω cu ω $-\mathbf{kv}$, iar a celei de probare ω' cu ω' $-\mathbf{kv}$. În cazul în care saturarea absorbţiei produsă de radiaţia de pompaj este mică ($G \ll 1$) coeficientul de absorbţie al undei de probare este dat de o expresie de forma

$$K_{(+)}(\Delta)=K_0 \exp\left[-\left(\frac{\Omega}{ku}\right)^2\right]\left\{1-\frac{G}{2}\cdot\frac{(2\gamma)^2}{(2\gamma)^2+\Delta^2}\left[1+\left(\frac{\gamma_1}{\gamma_1^2+\Delta^2}+\frac{\gamma_2}{\gamma_2^2+\Delta^2}\right)\times\right.\right.$$

$$\left.\left.\times\frac{\gamma_R}{2}+\frac{\gamma_R}{4\gamma}\left(\frac{\Delta^2}{\gamma_1^2+\Delta^2}+\frac{\Delta^2}{\gamma_2^2+\Delta^2}\right)\right]\right\}. \quad (17.95)$$

Primul termen al relaţiei (17.95) descrie contribuţia radiaţiei de pompaj la saturarea diferenţei de populaţie a nivelelor, iar ceilalţi termeni descriu contribuţia efectelor care depind liniar de parametrul de saturaţie. Odată cu creşterea intensităţii cîmpului cresc şi lărgimea şi adîncimea „golului'' care apare în linia de absorbţie (fig. 17.15).

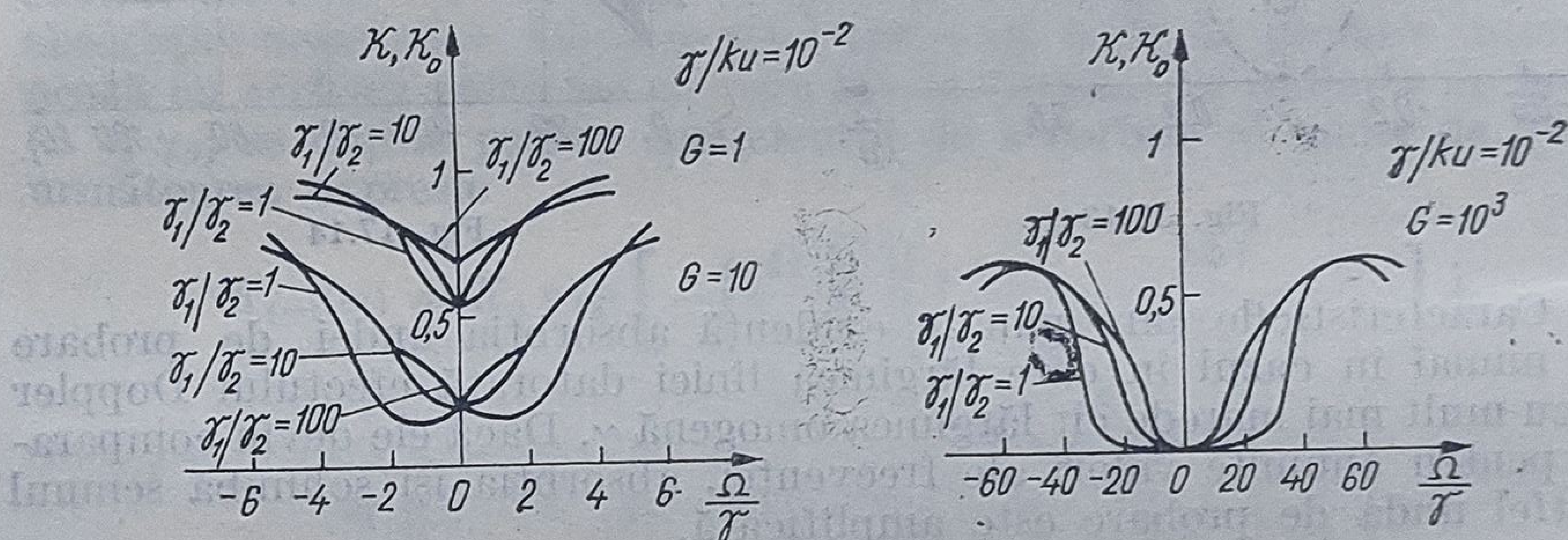


Fig. 17.15

Dacă se ia în considerare efectul ciocnirilor la schimbarea fazei şi se admite $\gamma \gg \gamma_2 \gg \gamma_1$, atunci forma liniei dată de relaţia (17.95) poate fi considerată ca fiind formată din trei „goluri'' lărgite omogen cu semilărgimi 2γ, γ_1, γ_2 şi adîncimii $G/2$, $(G/2)(\gamma_2/\gamma_1+\gamma_2)$ şi $(G/2)(\gamma_1/\gamma_2+\gamma_2)$.

17.7. Teoria proceselor de interacţie rezonantă dintre radiaţia laser şi un sistem gazos cu trei nivele energetice

Fenomenele de emisie şi absorbţie rezonantă rezultate din interacţia neliniară a două sau mai multe cîmpuri cu un sistem gazos cu trei nivele energetice stau la baza spectroscopiei cu rezoluţie foarte înaltă. Tranziţiile cuplate $1 \to 0$, $0 \to 2$ rezultate în urma interacţiei rezonante cu cîmpurile de frecvenţe ω_{10} (de pompaj) şi ω_{20} (de probare) pot avea loc fie în cascadă (fig. 17.16, a) fie cu ramificaţii (fig. 17.16, b, c).

Forma liniei semnalului de probare corespunzătoare tranziţiei $0 \to 2$ este foarte mult influenţată de schimbarea populaţiilor nivelelor datorită radiaţiei de pompaj, dar şi de efectelor de coerenţă, iar în cazul cînd

nivelele implicate în tranziții sînt suficient de depărtate, lărgimea liniei este determinată și de lărgimile nivelelor inițial și final. Primele considerații teoretice legate de sistemul cu trei nivele, au asociat efectele de îngustare ale liniilor radiațiilor emise sub influența radiației de pompaj cu tranzițiile care implică doi fotoni și cu schimbarea probabilității tranzițiilor care implică un foton în prezența cîmpului de pompaj [147], [161]. Anizotropia liniei rezultate în urma tranziției cuplate și schimbarea formei sale au fost interpretate și pe baza interferenței efectelor neliniare care apar în urma mixării stărilor staționare ale atomului izolat cu cîmpul exterior [147, 161]. Explicațiile bazate pe interferența proceselor care implică tranziții cu două cuante, cu cele în treaptă care implică tranziții cu o singură cuantă [147, 161] scot în evidență importanța proceselor de relaxare și leagă teoria clasică a împrăștierii cu teoriile moderne, care cuprind trei etape : 1) formarea unei distribuții de neechilibru a atomilor după viteze ; 2) despicarea nivelelor atomice și 3) interferența dintre efectele de coerență și efectele pe care radiația de pompaj le are asupra atomilor [184, 193].

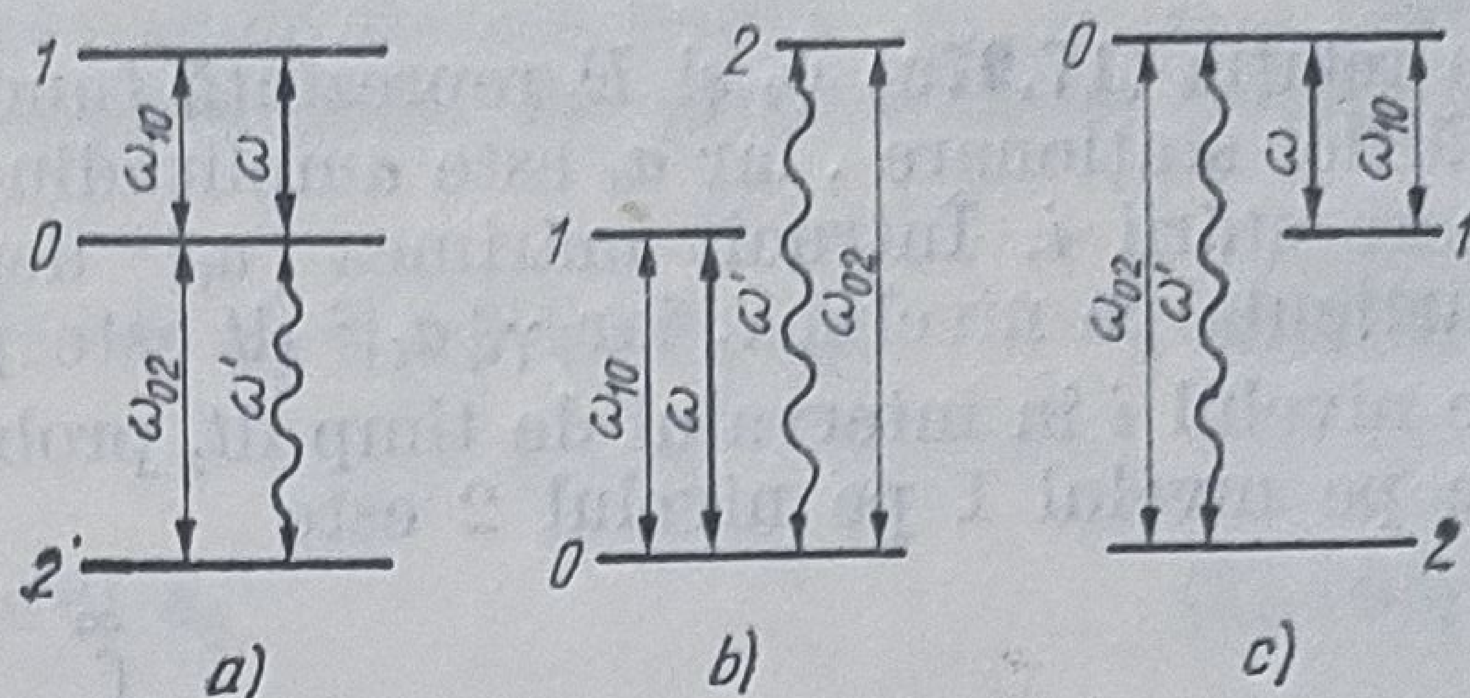


Fig. 17.16

Descrierea fenomenelor care au loc la interacția mai multor cîmpuri cu tranzițiile cuplate aflate la rezonanță este mai simplă dacă se fac următoarele aproximații:

— dezacordurile dintre frecvențele cîmpurilor și frecvențele tranzițiilor $0 \to 1$ și $0 \to 2$: $\Omega = \omega - \omega_{01}$ și $\Omega' = \omega - \omega_{02}$ sînt mai mici decît lărgimea Doppler a liniilor, adică $\Omega \leqslant \mathbf{ku}$ și $\Omega' \leqslant \mathbf{ku}$, unde $u = \sqrt{\frac{2kT}{m}}$, iar $\mathbf{k}$ și $\mathbf{k}'$ sînt vectorii de undă corespunzători radiațiilor determinate de tranzițiile $1 \to 0$ și $2 \to 0$;

— lărgimile omogene ale tranzițiilor $0 \to 1$, $0 \to 2$, γ_{01} și γ_{02} sînt mult mai mici decît lărgimile Doppler $\mathbf{k\,u}$ și $\mathbf{k'u}$ ale celor două linii;

— energiile de interacție dintre atom și cîmp $\frac{\mathbf{d}_{01}\mathbf{E}}{2\hbar}$ și $\frac{\mathbf{d}_{02}\mathbf{E}'}{2\hbar}$ (în unități $\hbar$) sînt mult mai mici decît lărgimile Doppler ($\mathbf{d}_{01}$ și $\mathbf{d}_{02}$ sînt elementele de matrice ale momentelor de dipol, corespunzătoare tranzițiilor $0 \to 1$ și $0 \to 2$, iar E și E' sînt amplitudinile cîmpurilor de frecvențe ω și ω';

— constantele de relaxare sînt diferite.

Pentru a determina forma liniei de absorbție a undei de probare corespunzătoare frecvenței ω' care este apropiată de frecvența Ω_{02} se consideră că sub acțiunea unui cîmp electric de forma

$$\mathbf{E}(r, t) = \mathbf{E}\cos(\omega t - \mathbf{kr}) + \mathbf{E}'\cos(\omega' t - \mathbf{k'r}) \tag{17.96}$$

o particulă care la momentul inițial se găsește pe nivelul 1 poate să se afle și în stările 0 și 2, astfel încît funcția de undă care descrie starea sa

este

$$\psi = a_1(t)\psi_1 e^{-\frac{iE_1}{\hbar}t} + a_0(t)\psi_0 e^{-\frac{iE_0}{\hbar}t} + a_2(t)\psi_2 e^{-\frac{iE_2}{\hbar}t} . \quad (17.97a)$$

În relația (17.97a) ψ_i și E_i reprezintă funcțiile de undă, respectiv energiile stărilor staționare, iar a_i este amplitudinea de probabilitate corespunzătoare stării i. Întrucît mărimea $|a_i|^2$ definește probabilitatea de a găsi particula pe nivelul i, iar $\gamma_i|a_i|^2\,dt$ este probabilitatea de dezexcitare de pe nivelul i în intervalul de timp dt, probabilitatea ca particula să treacă de pe nivelul 1 pe nivelul 2 este

$$w_{12} = \gamma_2 \int_0^\infty |a_2|^2 dt. \quad (17.97b)$$

Întrucît în absența cîmpurilor E' și E, $|(a_2)|^2 = 0$, rezultă că probabilitatea totală de relaxare pe nivelul 2 pentru un timp foarte lung este egală cu probabilitatea de tranziție a particulei de pe nivelul 1 pe nivelul 2 sub acțiunea cîmpurilor de pompaj E și probare E'.

Energia emisă sau absorbită de un atom la frecvența ω' poate fi calculată cu ajutorul probabilității de tranziție

$$E = \hbar\omega' w_{1\to 2} \quad (17.98)$$

sau cu ajutorul operatorului momentului de dipol

$$E = \int_0^\infty e \frac{\partial\langle \mathbf{r}\rangle}{\partial t} \mathbf{E}'(t) dt. \quad (17.99)$$

În relația (17.99) e reprezintă sarcina electronului, $\mathbf{r}$ coordonata sa iar

$$\mathbf{E}'(t) = \mathbf{E}' \cos \omega t. \quad (17.100)$$

Ținînd seama de formula mediei

$$\langle \mathbf{r}\rangle = \int \psi^* \mathbf{r}\, \psi\, dq \quad (17.101)$$

se obține în final pentru energie relația

$$E = d_{02} E' \mathrm{Re} \left\{ i\omega_{02} \int_0^\infty a_0^*(t) a_2(t) e^{-i\Omega' t} dt \right\} \quad (17.102)$$

unde

$$d_{02} = e\, r_{02} = e \int \psi_0^*(r)\, r\, \psi_2(r) dr. \quad (17.103)$$

reprezintă elementul de matrice al momentului de dipol corespunzător tranziției $0 \to 2$.

17.7.1. Formalismul Schrödinger

Folosind același procedeu ca și în cap. 17.2 și considerînd că frecvențele ω și ω' sînt apropiate de frecvențele de rezonanță ω_{01} și ω_{02}, iar $\omega_{12} \gg \Omega$ și Ω', se obțin pentru amplitudinile de probabilitate ecuațiile

$$\dot{a}_0 + \frac{\gamma_0}{2} a_0 = \mathrm{i}\, V\, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\Omega t}\, a_1 + \mathrm{i}\, V' \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\Omega' t}\, a_2 \tag{17.104}$$

$$\dot{a}_1 + \frac{\gamma_1}{2} a_1 = \mathrm{i}\, V\, \mathrm{e}^{\mathrm{i}\Omega t}\, a_0 \tag{17.105}$$

$$\dot{a}_2 + \frac{\gamma_2}{2} a_2 = \mathrm{i}\, V'\, \mathrm{e}^{\mathrm{i}\Omega t}\, a_0 \tag{17.106}$$

unde
$$V = \frac{d_{01}E}{2\hbar} \quad \text{și} \quad V' = \frac{d_{02}E'}{2\hbar}. \tag{17.107}$$

Calculul amplitudinii de probabilitate a_2 se face cu ajutorul teoriei perturbațiilor în aproximația cîmpurilor slabe. În aproximația de ordin zero (deci în absența cîmpurilor)

$$a_0 = a_2 = 0 \quad \text{iar} \quad a_1 = \mathrm{e}^{-\gamma_1 t/2}. \tag{17.108}$$

Înlocuind $a_1(t) = \exp(-\gamma_1 t/2)$ în relația (17.105) și ținînd seama de condițiile inițiale $a_0(t=0) = 0$ se obțin prin integrare pentru amplitudinile de probabilitate a_0 și a_2 relațiile

$$a_0(t) = \mathrm{i}\, V \frac{\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\Omega t - \frac{\gamma_1 t}{2}} - \mathrm{e}^{-\frac{\gamma_0 t}{2}}}{\frac{\gamma_0 - \gamma_1}{2} - \mathrm{i}\Omega} \tag{17.109}$$

$$a_2(t) = -V'V \frac{1}{\frac{\gamma_0 - \gamma_1}{2} - \mathrm{i}\,\Omega} \cdot \frac{\mathrm{e}^{\mathrm{i}(\Omega' - \Omega)t - \frac{\gamma_1}{2} t} - \mathrm{e}^{-\frac{\gamma_2}{2} t}}{\frac{\gamma_2 - \gamma_1}{2} + \mathrm{i}(\Omega' - \Omega)} - \frac{\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Omega' t - \frac{\gamma_0}{2} t} - \mathrm{e}^{-\frac{\gamma_2}{2} t}}{\frac{\gamma_2 - \gamma_0}{2} + \mathrm{i}\Omega'}. \tag{17.110}$$

Amplitudinea de probabilitate $a_0(t)$ este diferită de cea obținută în cazul încare excitarea nivelelor se face incoerent și conține doi termeni: primul oferă informații asupra frecvenței radiației incidente și timpului de viață al nivelului 1, iar al doilea descrie pierderile determinate de timpul de viață al nivelului 0. Momentul de dipol al atomului definit cu ajutorul relației (17.103) conține două frecvențe: cea de tranziție ω_0 și cea a cîmpu-

lui Ω', fiecare componentă relaxîndu-se cu rata corespunzătoare γ_0 și γ_1. Pentru dezacorduri mari ale frecvenței ($\Omega \gg \gamma_0, \gamma_1$) puterea absorbită de atom este determinată numai de momentul de dipol indus, iar la rezonanță, intervin ambele momente de dipol, obținîndu-se pentru $\gamma_0 = \gamma_1$ contribuții egale.

Amplitudinea de probabilitate $a_2(t)$ conține atît termeni care oscilează în timp cît și termeni care caracterizează pierderile. Termenul care oscilează cu frecvența $\Omega' - \Omega$ determină momentul de dipol al tranziției $1 \to 2$ cu frecvența $\omega' - \omega$. Tranziția $0 \to 2$ este caracterizată de un moment de dipol care conține frecvențele ω_{01} și ω' la fel ca în cazul unui sistem cuantic cu două nivele. Acțiunea cîmpului asupra tranzițiilor cuplate este determinată de apariția unui moment de dipol indus cu frecvențele $\omega_{02} + \Omega$, $\omega_{02} + (\Omega' + \Omega)$ și $\omega_{02} + (\Omega' - \Omega)$ ale cărui componente Fourier cu frecvența ω_{02} determină proprietățile de absorbție la această frecvență.

17.7.2. Formalismul matricei densitate

Întrucît aplicarea formalismului Schrödinger este condiționată de cunoașterea condițiilor inițiale în care se găsește sistemul, se utilizează frecvent în studiu formalismul matricei densitate (anexa 1) în cadrul căruia se lucrează cu valori medii ale întregului ansamblu, care pot fi măsurate experimental și în plus permite o simplificare a calculelor pentru includerea fenomenelor de relaxare datorită ciocnirilor. Ecuațiile care descriu comportarea unui sistem cuantic cu trei nivele aflat sub acțiunea a două cîmpuri date de relația (17.96) cu frecvențe ω și ω' apropiate de cele de tranziție ω_{01} și ω_{02} sînt următoarele

$$\left(\frac{d}{dt} + \gamma_0\right) \rho_{00} = iV\rho_{10} - iV\rho_{01} + iV'\rho_{20} - iV'\rho_{02} \tag{17.111}$$

$$\left(\frac{d}{dt} + \gamma_1\right) \rho_{11} = -i[V\rho_{10} - V\rho_{01}] + \gamma_1 \rho_{11}^{(0)} \tag{17.112}$$

$$\left(\frac{d}{dt} + \gamma_2\right) \rho_{22} = -i[V'\rho_{20} - V'\rho_{02}] \tag{17.113}$$

$$\left(\frac{d}{dt} + i\omega_{02} + \gamma_{02}\right) \rho_{02} = -iV'(\rho_{00} - \rho_{22}) + iV\rho_{12} \tag{17.114}$$

$$\left(\frac{d}{dt} + i\omega_{01} + \gamma_{01}\right) \rho_{01} = -iV(\rho_{00} - \rho_{11}) + iV'\rho_{21} \tag{17.115}$$

$$\left(\frac{d}{dt} + i\omega_{12} + \gamma_{12}\right) \rho_{12} = iV\rho_{02} - iV'\rho_{10} \tag{17.116}$$

unde
$$\frac{d}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \mathbf{v}\frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \tag{17.117}$$

$\rho_{ik} = \rho_{ki}^*$, iar $\rho_{11}^{(0)}$ este soluția ecuațiilor (17.111)–(17.116) în absența cîmpurilor.

Coeficientul de absorbție K, determinat de partea imaginară a susceptibilității este legat de polarizarea mediului prin relația

$$P(\mathbf{r}, t) = \chi' E' e^{-i(\omega' t - k'r)}. \qquad (17.118)$$

Polarizarea mediului se calculează cu ajutorul elementelor nediagonale ale matricei densitate, cu o relație de forma

$$P = d_{02}(\rho_{02} + \rho_{20}) N_0. \qquad (17.119)$$

În cazul staționar, pot fi admise pentru elementele de matrice ρ_{01}, ρ_{02} și ρ_{12} soluții de forma

$$\rho_{01} = \mathrm{i} V e^{-i\omega t + ikr} \cdot r_{01} \qquad (17.120)$$

$$\rho_{02} = \mathrm{i} V' e^{-i(\omega')t + ik'r} \cdot r_{02} \qquad (17.121)$$

$$\rho_{12} = V' V e^{i(\omega - \omega')t - i(k - k')r} \cdot r_{12}. \qquad (17.122)$$

Înlocuind aceste valori în relațiile (17.111)—(17.116), neglijînd termeni în V'^2 și considerînd un parametru de saturație $G = \left(\frac{2V^2}{\gamma_{01}}\right)\left(\frac{1}{\gamma_0} + \frac{1}{\gamma_1}\right)$ (17.123)

foarte mic ($G \ll 1$), se obține pentru elementul ρ_{02} expresia

$$\rho_{02} = -\mathrm{i} V' V^2 e^{-i\omega' t + ik'r} \left\{ \frac{2\gamma_{01}}{\gamma_0(\gamma_{02} - i\Omega')(\Omega^2 + \gamma_{01}^2)} + \right.$$

$$\left. + \frac{1}{(\gamma_{01} + i\Omega)\,[\gamma_{12} - i(\Omega' - \Omega)](\gamma_{02} - i\Omega')} \right\} \rho_{11}^0 \qquad (17.124)$$

cu ajutorul căreia poate fi calculată polarizarea și de asemenea coeficientul de absorbție. Din expresiile elementelor de matrice se observă că momentul de dipol care apare în tranziția $0 \to 2$ la frecvența ω' se datorește atît diferenței de populație dintre nivelele 0 și 2, cît și inducției din partea cîmpului exterior. Momentul de dipol care apare cu frecvența ω poate fi reprezentat schematic în felul următor

a) $$n_1 \bullet \xrightarrow{E} d_{01} \xrightarrow{E} n_0 \bullet \xrightarrow{E} d_{02} \xrightarrow{E'} n_2 \qquad (17.125)$$

b) $$n_1 \bullet \xrightarrow{E} d_{01} \xrightarrow{E'} d_{12} \xrightarrow{E} d_{02} \xrightarrow{E'} n_2. \qquad (17.126)$$

În cazul procesului a) corespunzător tranzițiilor în treaptă, cîmpul E polarizează tranziția $0 \to 1$ și induce un moment de dipol d_{01} care în urma interacției cu același cîmp modifică populația nivelului 0 (datorită absorbției). Fenomenele se petrec analog și în cazul tranziției $0 \to 2$ sub acțiunea cîmpului E'.

Procesul b) care nu este însoțit de modificarea populațiilor nivelului 0 este determinat de polarizarea P_{01} rezultată în urma interacției dintre cîmpul E și polarizarea P_{12}. Interacția dintre polarizarea P_{01} și cîmpul E' conduce la excitarea nivelului 2 și la polarizarea corespunzătoare tranziției $2 \to 1$

Probabilitatea de tranziție între nivelele 1 și 2 poate fi calculată atît cu ajutorul amplitudinii de probabilitate $a_2(t)$ cît și cu ajutorul elementului de matrice ρ_{02}, sub forma

$$w_{12} = \frac{2V^2V'^2}{\left(\frac{\gamma_1+\gamma_0}{2}\right)^2+\Omega^2}\,\mathrm{Re}\left\{\frac{1}{\gamma_1}\cdot\frac{1}{\left[\frac{\gamma_1+\gamma_2}{2}+i(\Omega'-\Omega)\right]}+\right.$$

$$\left.+\frac{1}{\gamma_0}\cdot\frac{1}{\frac{\gamma_0+\gamma_2}{2}+i\Omega'}+\frac{1}{\left(\frac{\gamma_0+\gamma_2}{2}+i\Omega'\right)\left[\frac{\gamma_1+\gamma_2}{2}+i(\Omega'-\Omega)\right]}\right\}. \tag{17.127}$$

Primul termen al relației (17.127) are valoarea maximă la frecvența $\omega'-\omega_0$ cînd se realizează condiția $\Omega'-\Omega=0$. Linia are în acest caz lărgimea tranziției interzise $1\to 2$, iar procesul poate fi atribuit unei tranziții care implică două cuante.

Al doilea termen descrie linia care apare în urma tranziției $0\to 2$ și implică o singură cuantă, avînd valoarea maximă pentru $\Omega'=0$, iar lărgimea liniei egală cu lărgimea tranziției.

Al treilea termen este determinat de interferența proceselor descrise de primii doi termeni.

Cînd dezacordurile frecvențelor sînt mari, $\Omega \gg \gamma_1+\gamma_0$ linia obținută prin emisie stimulată, prezintă două maxime de lărgimi $\gamma_1+\gamma_0$ și $\gamma_1+\gamma_2$ corespunzătoare frecvențelor $\Omega'=0$ și $\Omega'=\Omega$ ale căror intensități relative depind de ratele de relaxare pentru nivelele 0 și 1. Astfel, dacă nu se lucrează la rezonanță, liniile care corespund tranzițiilor în treaptă și implică o singură cuantă sînt separate de cele legate de împrăștierea Raman.

La rezonanță, contribuția primilor doi termeni din relația (17.127) crește. Dacă $\gamma_0 \gg \gamma_1, \gamma_2$ contribuția ultimilor doi termeni din relația (17.127) poate fi neglijată, astfel că probabilitatea

$$w_{12} = \frac{2V^2V'^2}{\Omega^2+\gamma_0^2/4}\,\mathrm{Re}\left\{\frac{1}{\gamma_1}\cdot\frac{1}{\frac{\gamma_1+\gamma_2}{2}+i(\Omega'-\Omega)}\right\} \tag{17.128}$$

este determinată de tranzițiile ce implică două cuante. Pentru $\gamma_0 \ll \gamma_1$ contribuția celui de-al doilea termen al relației (17.127) devine importantă scoțîndu-se în evidență tranzițiile în treaptă care implică o singură cuantă. Probabilitatea de tranziție w_{12} funcție de dezacordul frecvențelor, este prezentată în fig. 17.17.

Dacă ratele de relaxare sînt egale, linia obținută este determinată de interferența proceselor în treaptă care implică o singură cuantă cu tranzițiile care implică două cuante.

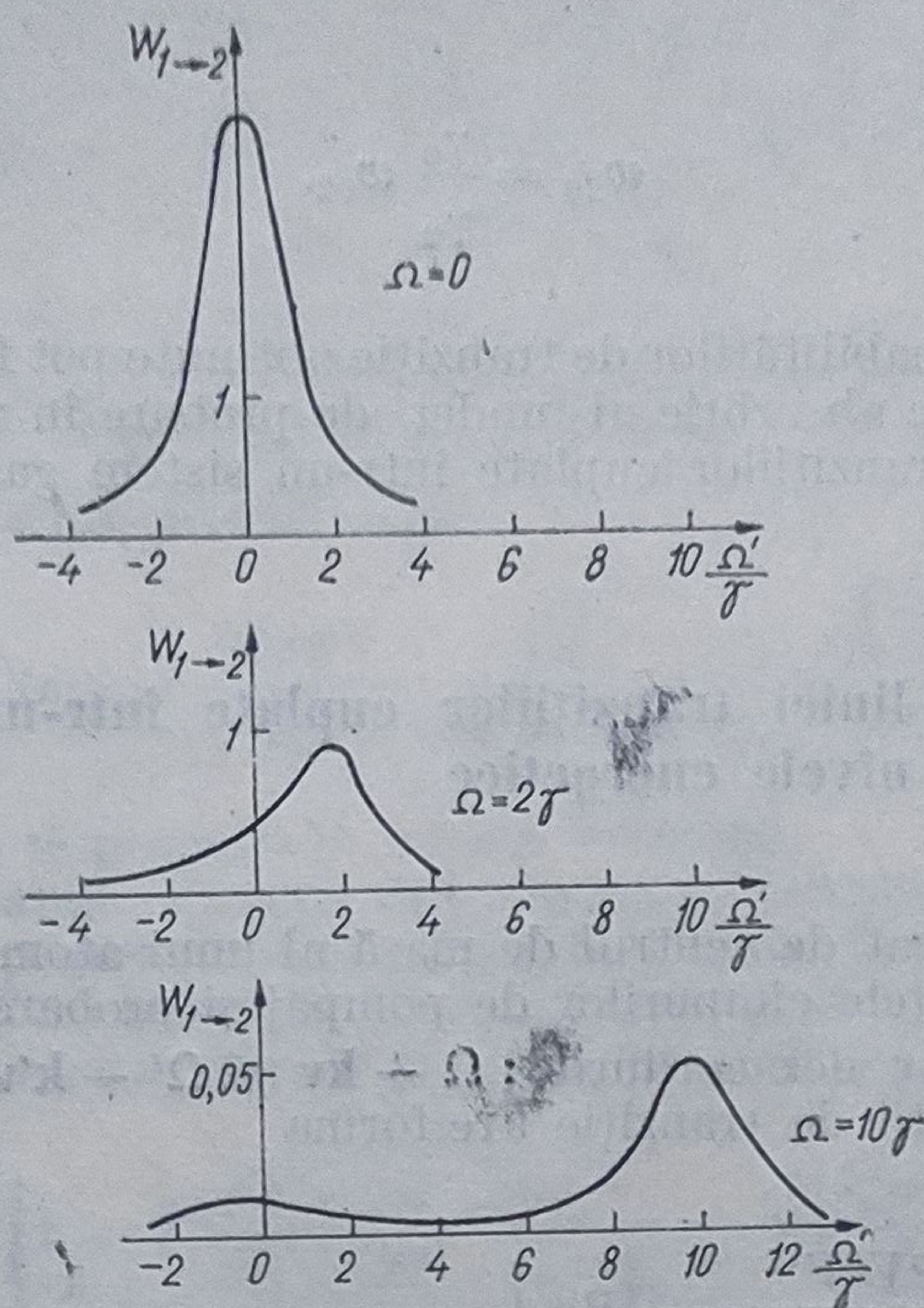


Fig. 17.17

Probabilitatea de tranziţie $0 \to 2$ este influenţată de cîmpul care determină tranziţia $1 \to 0$ şi este dată de relaţia

$$w_{02} = \frac{V'^2(\gamma_0+\gamma_2)}{\gamma_0} \cdot \frac{1}{\left[\Omega'^2 + \left(\frac{\gamma_0+\gamma_2}{2}\right)^2\right]} -$$

$$- \left\{ \frac{4V'^4\left(\frac{\gamma_0+\gamma_2}{2}\right)^2}{\gamma_0} \left(\frac{1}{\gamma_2} + \frac{1}{\gamma_0}\right) \cdot \frac{1}{\left[\Omega'^2 + \left(\frac{\gamma_0+\gamma_2}{2}\right)^2\right]^2} + \right.$$

$$+ \frac{2V^2V'^2}{\gamma_0} \operatorname{Re} \left[\frac{\gamma_0+\gamma_2}{\gamma_0\left(\frac{\gamma_0+\gamma_1}{2} + i\Omega\right)\left[\Omega'^2 + \left(\frac{\gamma_0+\gamma_2}{2}\right)^2\right]} + \right.$$

$$+ \frac{1}{\left(\frac{\gamma_0+\gamma_2}{2} - i\Omega'\right)^2 \left[\frac{\gamma_1+\gamma_2}{2} + i(\Omega - \Omega')\right]} +$$

$$\left. \left. + \frac{1}{\left(\frac{\gamma_0+\gamma_2}{2} - i\Omega'\right)\left(\frac{\gamma_0+\gamma_1}{2} + i\Omega\right)\left[\frac{\gamma_1+\gamma_2}{2} + i(\Omega-\Omega')\right]} \right] \right\} \tag{17.129}$$

Cînd particula se află pe nivelul excitat 2, probabilitatea de tranziție $2 \to 0$ este

$$w_{20} = \frac{\gamma_0}{\gamma_2} w_{02}. \tag{17.130}$$

Expresiile probabilităților de tranziție obținute pot fi folosite la calculul coeficientului de absorbție al undei de probare în vederea caracterizării formei liniei tranzițiilor cuplate într-un sistem gazos.

17.8. Forma liniei tranzițiilor cuplate într-un sistem gazos cu trei nivele energetice

În sistemul legat de centrul de masă al unui atom aflat în mișcare cu viteza **v**, frecvențele cîmpurilor de pompaj și probare devin: $\omega - \mathbf{kv}$ respectiv $\omega' - \mathbf{k'v}$ iar dezacordurile: $\Omega - \mathbf{kv}$ și $\Omega' - \mathbf{k'v}$, încît, în final, expresia probabilității de tranziție are forma

$$w_{12}^{(\mp)}(v) = \frac{2V^2V'^2}{(\Omega - \mathbf{kv})^2 + \left(\frac{\gamma_0+\gamma_1}{2}\right)^2} \cdot \mathrm{Re}\left\{\frac{1}{\gamma_1\left[\frac{\gamma_1+\gamma_2}{2} + i(\Omega' - \Omega + \mathbf{kv} \mp \mathbf{k'v})\right]} + \right.$$

$$+ \frac{1}{\gamma_0\left[\frac{\gamma_0+\gamma_2}{2} + i(\Omega' \mp \mathbf{k'v})\right]} +$$

$$\left. + \frac{1}{\left[\frac{\gamma_1+\gamma_2}{2} + i(\Omega' - \Omega + \mathbf{kv} \mp \mathbf{k'v})\right]\left[\frac{\gamma_0+\gamma_2}{2} + i(\Omega' \mp \mathbf{k'v})\right]}\right\}. \tag{17.131}$$

Semnul (—) corespunde propagării undelor E și E' în aceeași direcție, iar semnul (+) în direcții opuse.

Relația (17.131) poate fi particularizată pentru două cazuri mai importante:

a) cînd nu este îndeplinită condiția de rezonanță $\Omega \gg \gamma_0, \gamma_1, \gamma_2$ (aceasta corespunde împrăștierii Raman stimulate) al doilea termen poate fi neglijat obținîndu-se pentru probabilitate expresia

$$\langle w_{12}^{(-)}(v)\rangle = \frac{2V^2V'^2}{\Omega^2} \mathrm{Re}\left\{\frac{1}{\gamma_1} \cdot \frac{1}{\frac{\gamma_1 - \gamma_2}{2} - i(\Omega' - \Omega)}\right\} \tag{17.132}$$

cu :

$$\gamma_1 + \gamma_2 \gg |\mathbf{k}' - \mathbf{k}|u, \ \Omega' - \Omega$$

$$\langle w_{12}^{(-)}(v)\rangle = \frac{2V^2V'^2}{\Omega^2}\frac{\sqrt{\pi}}{|\mathbf{k}' - \mathbf{k}|u}\, e^{-\left[\frac{\Omega'-\Omega}{|\mathbf{k}'-\mathbf{k}|u}\right]^2} \cdot \frac{1}{\gamma_1} \qquad (17.133)$$

unde

$$(\gamma_1 + \gamma_2) \ll |\mathbf{k}' - \mathbf{k}|u, \ \Omega' - \Omega \qquad (17.134)$$

pentru undele avînd acelaşi sens

$$\langle w_{12}^{(+)}(v)\rangle = \frac{2V^2V'^2}{\Omega^2}\cdot\frac{\sqrt{\pi}}{(\mathbf{k}' + \mathbf{k})u}\cdot\frac{1}{\gamma_1}\, e^{-\left[\frac{\Omega'-\Omega}{|\mathbf{k}'+\mathbf{k}|u}\right]^2} \qquad (17.135)$$

pentru unde care se propagă în sensuri contrare.

b) la rezonanţă. Funcţie de intensitatea cîmpului de pompaj există două posibilităţi pentru studiul tranziţiilor cuplate la rezonanţă în prezenţa cîmpurilor E şi E' : cîmp slab ($G \ll 1$) respectiv cîmp puternic.

Expresia coeficientului de absorbţie în cazul cîmpului slab este

$$K_{\pm} = K_0 e^{-\left(\frac{\Omega'}{k'u}\right)}\left\{1 + V^2\frac{N_1^0 - N_0^0}{N_0^0 - N_2^0}\cdot\frac{2\gamma_{\pm}}{\gamma_0}\cdot\frac{k'/k}{\left(\Omega' \pm \frac{k'}{k}\Omega\right) + \gamma_{\pm}^2}\right\} \qquad (17.136)$$

pentru $k' > k$, şi

$$K_{+} = K_0 e^{-\left(\frac{\Omega'}{k'u}\right)^2}\left\{1 + \frac{N_1^0 - N_0^0}{N_0^0 - N_2^0}\cdot\frac{2\gamma_{+}}{\gamma_0}\,\frac{V^2k'/k}{\left(\Omega' + \frac{k'}{k}\Omega\right)^2 + \gamma_{+}^2}\right\}; \qquad (17.137)$$

$$K_{-} = K_0 e^{-\left(\frac{\Omega'}{k'u}\right)^2}\left\{1 + \frac{2k'}{k}\left(1 - \frac{k'}{k}\right)V^2\cdot\frac{\gamma_-^2 - \left(\Omega' - \frac{k'}{k}\Omega\right)^2}{\left[\gamma_-^2 + \left(\Omega' - \frac{k'}{k}\Omega\right)^2\right]^2} + \right.$$

$$\left. + \frac{N_1^0 - N_0^0}{N_0^0 - N_2^0}V^2\cdot\frac{2\gamma_-\frac{k'}{k}}{\gamma_0\left[\left(\Omega' - \frac{k'}{k}\Omega\right)^2 + \gamma_-^2\right]}\right\} \text{pentru } k' < k. \qquad (17.138)$$

În relaţiile (17.136)—(17.138) K_0 este coeficientul liniar de absorbţie corespunzător tranziţiei $0 \to 2$, N_1^0, N_0^0, N_2^0 sînt populaţiile nivelelor 1, 0, 2 în absenţa cîmpului, iar $\gamma_{\pm}$ sînt semilărgimile liniilor radiaţiilor împrăştiate înainte şi înapoi.

Existenţa expresiilor diferite pentru coeficienţii de absorbţie este determinată de faptul că lărgimea radiaţiei progresive este deformată de tranziţiile care implică două cuante, care sînt lărgite prin efect Doppler din cauza diferenţei dintre k' şi k, iar linia radiaţiei regresive este caracteris-

tică proceselor în treaptă avînd lărgimea determinată de tranziție $0 \to 2$ și de distribuția după viteze a particulelor de pe nivelul 0.

În cazul cîmpului puternic, expresiile coeficienților de absorbție sînt următoarele

$$K_{\pm} = K_0 e^{-\left(\frac{\Omega'}{k'u}\right)^2} \left[1 + \frac{N_1^0 - N_0^0}{N_0^0 - N_2^0} \cdot \frac{G}{\sqrt{1+G}} \cdot \frac{k'}{2k} \cdot \frac{\gamma_1 \gamma_{\pm}}{\gamma_{\pm}^2 + \left(\Omega' \pm \frac{k'}{k}\Omega\right)^2}\right] \tag{17.139}$$

unde
$$2\gamma_- = \gamma_2 + \gamma_1\sqrt{1+G} + \left(\frac{k'}{k} - 1\right)(\gamma_1 + \gamma_0)\sqrt{1+G}$$

$$2\gamma_+ = \gamma_2 + \gamma_0\sqrt{1+G} + \frac{k'}{k}(\gamma_1 + \gamma_0)\sqrt{1+G}$$

pentru $k' > k$, și

$$K'_-(\Omega') = K_0 e^{-\left(\frac{\Omega'}{k'u}\right)}, \frac{1}{\sqrt{\left(8V^2\frac{k'(k-k')}{k^2}\right)^{1/2}\left(\Omega' - \frac{k'}{k}\Omega\right)}} \times \tag{17.140}$$

$$\times \left\{ \frac{1}{\left[\left(\Omega' - \frac{k'}{k}\Omega\right) - \left(\frac{4V^2k'(k-k')}{k^2}\right)^{1/2}\right]^2 + \left[\frac{\gamma_0 + \gamma_2}{2} + \frac{k'}{2k}(\gamma_1 - \gamma_0)\right]} - \right.$$

$$\left. - \frac{1}{\left[\left(\Omega' - \frac{k'}{k}\Omega\right) + \left(\frac{4V^2k'(k-k')}{k^2}\right)^{1/2}\right]^2 + \left[\frac{\gamma_0 + \gamma_2}{2} + \frac{k'}{2k}(\gamma_1 - \gamma_0)\right]^2} \right\}^{1/2}$$

pentru $k' < k$.

Reprezentarea grafică a coeficientului de absorbție $K'(\omega')$ funcție de frecvența undei de probare ω' evidențiază două maxime (fig. 17.18) situate la frecvențele $\pm 2V\sqrt{\frac{k'(k-k')}{k^2}}$ cu distanța dintre ele mult mai mare decît lărgimea lor.

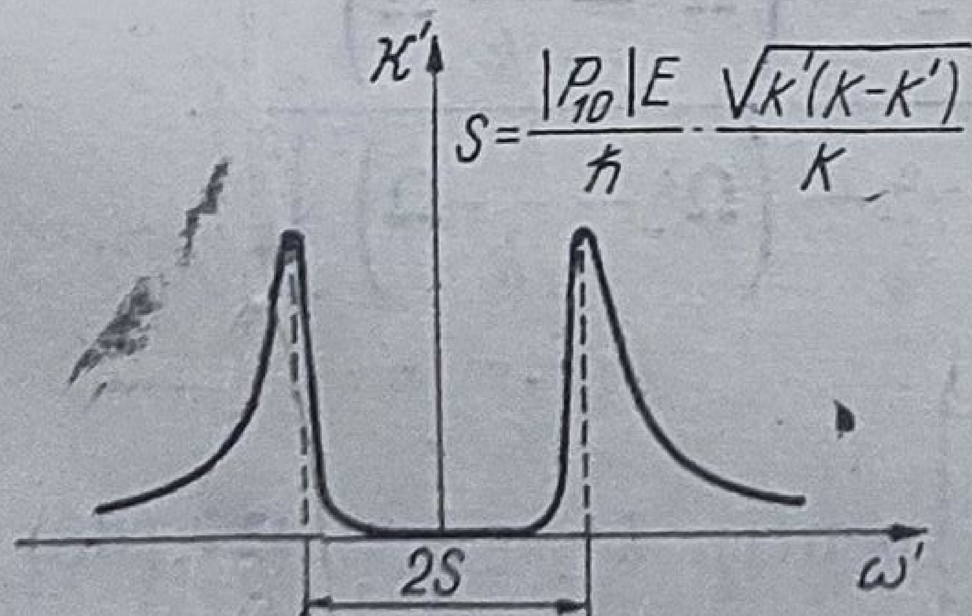


Fig. 17.18

Pentru valori mari ale parametrilor V, k' și $(k - k')$ distanța dintre cele două maxime este aproximativ egală cu $2V\sqrt{\frac{k'(k-k')}{k^2}}$.

În cîmpuri intense, pentru tranziția $0 \to 1$, probabilitatea de a găsi particula pe nivelul 0 oscilează cu o frecvență care depinde de mărimea cîmpului. Aceste oscilații care determină modularea momentului de dipol al tranziției $0 \to 2$ conduc la apariția de frecvențe de rezonanță adiționale, iar fenomenul poate fi interpretat ca un efect de despicare al nivelului 0.

Tehnicile și instalațiile experimentale cele mai des folosite în spectroscopia laser prin metoda absorbției saturate sînt prezentate în lucrarea [173].

18. SPECTROSCOPIA LASER BAZATĂ PE ABSORBȚIA A DOI FOTONI

18.1. Caracteristicile spectroscopiei laser bazate pe absorbția a doi fotoni

Deși teoria proceselor care includ mai mulți fotoni a fost formulată în jurul anului 1930 [147, 161], verificarea ei experimentală nu s-a putut face decît după descoperirea laserilor de putere.

Spectroscopia laser bazată pe absorbția a doi fotoni are următoarele caracteristici:

— stările inițială și finală au aceeași paritate;

— starea finală poate să aibă energia de excitare corespunzătoare domeniului U.V. îndepărtat în timp ce lumina incidentă poate să aibă frecvența în domeniul U.V. apropiat sau chiar albastru al spectrului;

— posibilitatea eliminării lărgirii liniilor spectrale datorită efectului Doppler.

Primele două caracteristici dau posibilitatea studierii unor stări care nu ar putea fi obținute prin folosirea proceselor care implică în tranziție un singur foton, iar ultima ne indică faptul că aceste stări pot fi studiate prin metode spectroscopice cu înaltă putere de rezoluție.

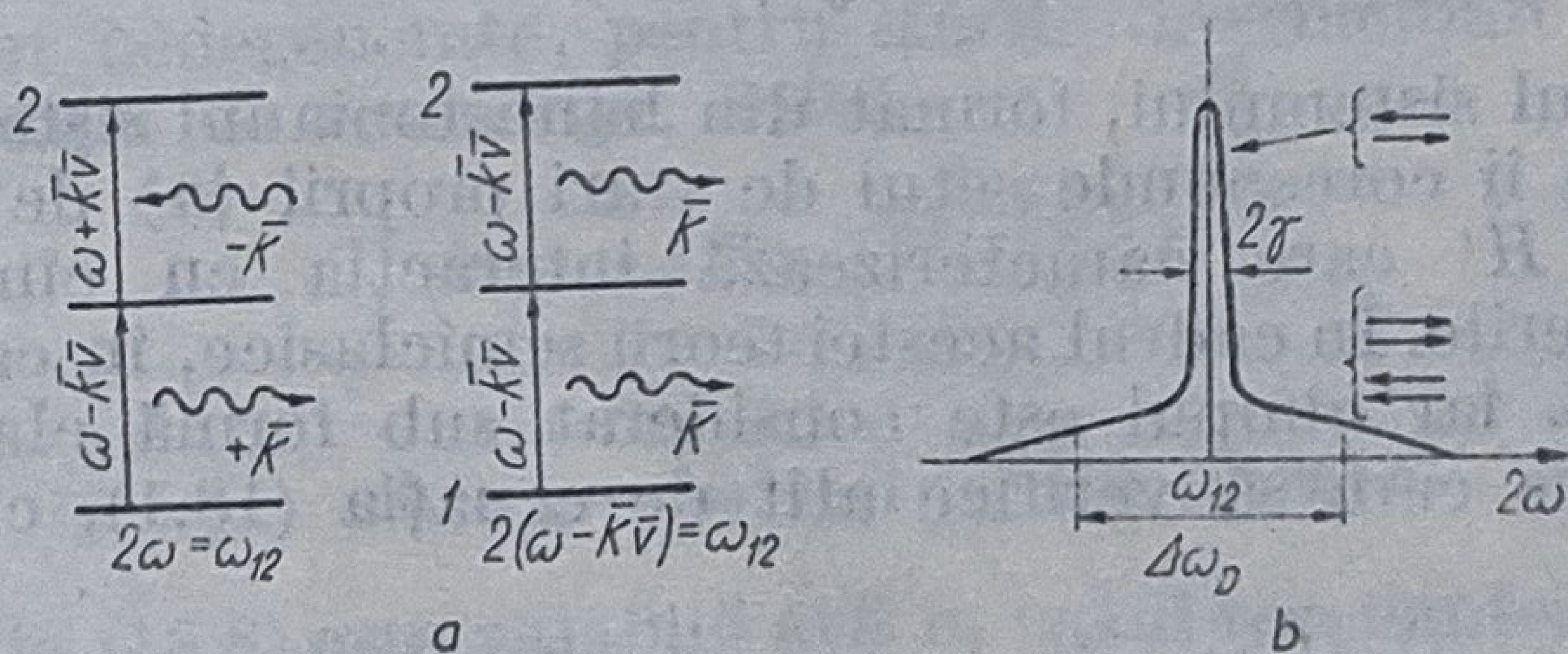


Fig. 18.1

Spectroscopia bifotonică se bazează pe absorbția simultană a doi fotoni cu energii egale care se propagă în sens contrar [147, 161], eliminîndu-se astfel fenomenul de lărgire a liniilor spectrale datorită efectului Doppler (fig. 18.1a și b). Această tehnică se deosebește de celelalte tehnici neliniare de eliminare a lărgirii liniilor spectrale prin efect Doppler prezentate anterior prin faptul că din punct de vedere al distribuției după viteze toți atomii sau moleculele mediului de interacție participă la obținerea semnalului, în comparație doar cu o mică parte din distribuția neomo-

genă în cazul spectroscopiei bazată pe saturarea absorbției. Forma liniei spectrale obținute prin absorbția bifotonică este reprezentată în fig. 18.1, b, amplitudinea ,,picului'' la rezonanță $2\omega = \omega_{12}$ în centrul liniei avînd un contrast determinat de raportul celor două lărgimi : Doppler și omogenă.

Întrucît lărgimea ,,picului'' corespunzător rezonanței nu depinde de curbura frontului de undă, pentru că cei doi fotoni sînt absorbiți simultan și în același punct din spațiu, este posibil să se lucreze cu fascicule de lumină cu secțiune transversală mare (zeci de centimetri pătrați) obținîndu-se astfel o facilizare în tehnica detecției.

De asemenea, prin emisia luminii, rezultată din tranziția de pe un nivel superior fără ca acesta să fie ocupat în mod real (fluorescență de rezonanță), se obține o linie spectrală care nu este lărgită nici natural și nici prin efect Doppler, ci numai datorită relaxării de pe această stare virtuală [147, 161].

18.2. Teoria absorbției bifotonice. Probabilități de tranziție. Reguli de selecție

Expresiile probabilităților de tranziție obținute prin absorbția a doi fotoni pot fi deduse utilizîndu-se atît metoda perturbațiilor [169], cît și cu ajutorul părții imaginare a susceptibilității neliniare de ordinul trei $\chi^{(3)}(-\omega_1'; \omega_1, \omega_2, -\omega_2)$, corespunzătoare unui atom aflat sub acțiunea unui cîmp electric exterior [171, 172].

Evoluția în timp a unui sistem cuantic aflat în interacție cu un cîmp electromagnetic poate fi descrisă folosind formalismul matricei densitate (anexa 1)

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[H, \rho] \tag{18.1}$$

unde

$$H = H_0 + H' \tag{18.2}$$

este hamiltonianul sistemului, format din hamiltonianul sistemului neperturbat H_0 căruia îi corespunde setul de stări proprii $|n\rangle$ de energii E_n și un hamiltonian H' care caracterizează interacția cu cîmpul electromagnetic și pierderile. În cadrul acestei teorii semiclasice, în care substanța este cuantificată, iar cîmpul este considerat sub formă clasică, trebuie obținută o soluție care să verifice atît de ecuația (18.1), cît și ecuația lui Maxwell

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = -\frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \tag{18.3}$$

unde **E** reprezintă cîmpul iar **P** polarizarea electrică a cărei valoare este dată de relația

$$\mathbf{P} = N\mathrm{Urm}\,(e\mathbf{r}\rho). \tag{18.4}$$

Întrucît relațiile (18.1)—(18.4) sînt generale, incluzînd toate tipurile de interacții neliniare, din cauza complexității calculelor, pentru rezolvarea lor, în diferite cazuri concrete se consideră numai anumite moduri ale

cîmpului electromagnetic și de asemenea un număr mic de nivele energetice ale sistemului, care au o contribuție dominantă. Astfel, în cazul absorbției bifotonice se consideră numai două moduri ale cîmpului electromagnetic, care este tratat clasic

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2}(\mathbf{e}_1 E_1 e^{i\mathbf{k}_1\mathbf{r}-i\omega_1 t} + \mathbf{e}_2 E_2 e^{i\mathbf{k}_2\mathbf{r}-i\omega_2 t}). \tag{18.5}$$

În sistemele atomice sau moleculare care au centru de inversie, polarizarea conține numai termeni cu puteri impare ale amplitudinii cîmpului electric, astfel că

$$P = \varepsilon_0(\chi^{(1)}E_1 + \chi^{(3)}E_1E_2E_3 + \ldots). \tag{18.6}$$

Pentru generalizare, s-a considerat un al treilea cîmp electric cu amplitudinea E_3 și frecvența ω_3, astfel încît polarizarea corespunzătoare frecvenței $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$, obținută prin metoda perturbațiilor [172] este dată de o expresie de forma

$$P(\omega_4) = \frac{1}{2}\chi^{(3)} E_1E_2E_3 e^{i(\mathbf{k}_1+\mathbf{k}_2+\mathbf{k}_3)\mathbf{r}-i\omega_4 t} + \text{c.c.} \tag{18.7}$$

cu

$$\chi^{(3)} = \frac{1}{4} N e^4 h^{-3} \sum_{n,n',n''} (\mathbf{r}\mathbf{e}_1)_{gn}(\mathbf{r}\mathbf{e}_2)_{nn'}(\mathbf{r}\mathbf{e}_3)_{n'n''}(\mathbf{r}\mathbf{e}_4)_{n''g} \times$$

$$\times \frac{1}{(\omega_{ng}-\omega_1-i\gamma_{ng}/2)(\omega_{n'g}-\omega_1-\omega_2-i\gamma_{n'g}/2)(\omega_{n''g}-\omega_1-\omega_2-\omega_3-i\gamma_{n''g}/2)} + \tag{18.8}$$

+ alți 23 termeni obținuți prin permutarea indicilor de la 1 la 4.

În relația (18.8) $|g\rangle$ specifică starea fundamentală, iar constanta de pierderi γ_{gn} reprezintă lărgimea liniei corespunzătoare tranziției $|g\rangle \to |n\rangle$ la jumătatea înălțimii. Pentru deducerea relației (18.8) s-au presupus următoarele : starea fundamentală $|g\rangle$ și cea finală $|f\rangle$ în care poate fi excitat sistemul sînt nedegenerate, pentru stările intermediare $|n\rangle$ nu este îndeplinită condiția de rezonanță, adică

$$|\omega_{ng} - \omega_1| \gg \gamma_R \tag{18.9}$$

și în plus

$$\hbar\,|\omega_{gn} - \omega - i\gamma_{gn}/2| \gg |e(\mathbf{r}\mathbf{e})E|. \tag{18.10}$$

Relația (18.8) este valabilă atît în cazul rezonanței, cît și cînd nu este îndeplinită condiția de rezonanță, întrucît s-au considerat și pierderile care au valori mai mari decît mărimea corespunzătoare hamiltonianului de interacție. Rezonanțele pot apare cînd una din frecvențele cîmpului sau o combinație a lor corespunde diferenței energetice dintre două nivele.

Frecvențele ω_1, ω_2 și ω_3 pot să ia valori pozitive sau negative, funcție de procesele fizice neliniare care sînt studiate. În cazul absorbției a doi fotoni frecvențele devin : $\omega_2 = -\omega_3$ și $\omega_4 = \omega_1$. Considerînd că starea finală $|f\rangle = |n'\rangle$ se obține prin absorbția a doi fotoni, adică $\omega_{n'g} = \omega_1 + \omega_2$, în relația (18.8) însumarea după n' se reduce la un singur termen corespunzător stării finale $|f\rangle$, iar însumarea după n și n'' poate fi scrisă sub

forma pătratică a unei singure sume. Neglijînd pierderile, adică $\omega_{ng} - \omega_1 - i\gamma_{ng} \simeq \omega_{ng} - \omega_1 = \omega_{ng} - \omega_4$ și ținînd seama că în cazul absorbției a doi fotoni susceptibilitatea devine pur imaginară se obține următoarea relație pentru partea imaginară a susceptibilității neliniare de ordinul trei

$$\chi''^{(3)}(-\omega_1; \omega_1, \omega_2, -\omega_2) = \frac{1}{2} N e^4 \hbar^{-3} \gamma_{gf}^{-1} \left| \sum_n \frac{(\mathbf{re}_1)_{gn} (\mathbf{re}_2)_{nf}}{\omega_{ng} - \omega_1} + \sum_n \frac{(\mathbf{re}_2)_{gn} (\mathbf{re}_1)_{nf}}{\omega_{ng} - \omega_2} \right|^2. \tag{18.11}$$

Ținînd seama că puterea absorbită pe unitatea de volum în cazul tranziției bifotonice este $\frac{1}{2}(\omega_1 + \omega_2)\chi''^{(3)} E_1^2 E_2^2$, prin împărțirea acestei expresii la energia implicată în tranziție $\hbar(\omega_1 + \omega_2)$ și numărul de atomi pe unitatea de volum se obține pentru rata tranziției pe atom, la rezonanță, corespunzătoare absorbției a doi fotoni, o expresie de forma

$$w_{f \leftarrow g} = e^4 \hbar^{-4} \gamma_{gf}^{-1} \left| \sum_n \frac{(\mathbf{re}_1)_{gn} (\mathbf{re}_2)_{nf}}{\omega_{ng} - \omega_1} + \sum_n \frac{(\mathbf{re}_2)_{gn} (\mathbf{re}_1)_{nf}}{\omega_{ng} - \omega_2} \right|^2 \cdot \frac{1}{4} |E_1|^2 |E_2|^2. \tag{18.12}$$

Din relația (18.12) se observă că probabilitatea tranziției $|g\rangle \rightarrow |f\rangle$ pe unitatea de timp este proporțională cu pătratele amplitudinilor cîmpurilor incidente și cu elementele de matrice de ordinul 2 corespunzătoare acestei tranziții.

Dacă se ține seama de mișcarea atomilor și de faptul că cele două cîmpuri cu frecvențele ω_1 și ω_2 se propagă în sens contrar, atunci pe baza efectului Doppler, frecvențele cîmpurilor corespunzătoare atomilor în mișcare devin $\omega_1 - k_1 v_x$ și $\omega_2 + k_2 v_x$, unde v_x reprezintă componenta vitezei atomilor de-a lungul cîmpului E_1. În aceste condiții relația (18.12) se transformă în

$$w_{f \leftarrow g} = \frac{1}{4} e^4 \hbar^{-4} |E_1|^2 |E_2|^2 \frac{\gamma_{gf}}{[\omega_{fg} + (k_1 - k_2) v_x - \omega_1 - \omega_2]^2 + \left(\frac{\gamma_{gf}}{2}\right)^2} \times \\ \times \sum_n \left[\frac{(\mathbf{re}_1)_{gn} (\mathbf{re}_2)_{nf}}{\omega_{ng} + k_1 v_x - \omega_1} + \frac{(\mathbf{re}_2)_{gn} (\mathbf{re}_1)_{nf}}{\omega_{ng} - k_2 v_x - \omega_2} \right]. \tag{18.13}$$

Lărgimea Doppler a liniei corespunzătoare absorbției a doi fotoni, obținută prin integrare după viteze are valoarea $(k_1 - k_2)u$ și pentru valori suficient de apropiate ale frecvențelor celor două cîmpuri, este mult mai mică în comparație cu lărgimea omogenă $\frac{\gamma_{fg}}{2}$.

În cazul particular $\mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_2$, lărgirea liniei datorită efectului Doppler dispare dacă cei doi fotoni sînt absorbiți separat de la fiecare fascicul.

Ţinînd seama totuşi că mai există posibilitatea de absorbţie a cîte doi fotoni de la fiecare fascicul, rata totală a tranziţiei devine

$$w_{f\leftarrow g} = \frac{1}{4} e^4 \hbar^{-4} |E_1|^2 |E_2|^2 \frac{\gamma_{gf}}{(\omega_{fg} - \omega_1 - \omega_2)^2 + \left(\frac{\gamma_{gf}}{2}\right)^2} \times$$

$$\times \left| \sum_n \frac{(\mathbf{re}_1)_{gn} (\mathbf{re}_2)_{nf} + (\mathbf{re}_2)_{gn} (\mathbf{re}_1)_{nf}}{\omega_{ng} - \omega_1} \right|^2 +$$

$$+ \frac{\frac{1}{4} e^4 \hbar^{-4} |E_1|^4 \gamma_{gf}}{(\omega_{fg} - 2\omega_1 + 2k_1 v_x)^2 + \left(\frac{\gamma_{gf}}{2}\right)^2} \left| \sum_n \frac{(\mathbf{re}_1)_{gn} (\mathbf{re}_2)_{nf}}{\omega_{ng} - \omega_1} \right|^2 +$$

$$+ \frac{\frac{1}{4} e^4 \hbar^{-4} |E_2|^4 \gamma_{gf}}{(\omega_{fg} - 2\omega_1 - 2k_1 v_x)^2 + \left(\frac{\gamma_{gf}}{2}\right)^2} \left| \sum_n \frac{(\mathbf{re}_2)_{gn} (\mathbf{re}_2)_{nf}}{\omega_{ng} - \omega_1} \right|^2. \quad (18.14)$$

Fenomenul de absorbţie a doi fotoni mai poate fi caracterizat şi de secţiunea transversală de absorbţie, obţinută prin împărţirea ratei tranziţiei la numărul de fotoni pe cm², pe secundă, care se propagă de-a lungul vectorului de undă $\mathbf{k}_1$

$$\sigma^2(\omega) = \frac{(16\pi^2 \gamma_{fg}\, \omega e^4 \hbar^{-3})/c^2}{(\omega_{fg} - 2\omega)^2 + \left(\frac{\gamma_{fg}}{2}\right)^2} \left| \sum_n \frac{\langle f|\mathbf{d}|n\rangle \langle n|\mathbf{d}|g\rangle}{\hbar(\omega_{fg} - 2\omega)} \right|^2 \cdot \frac{P}{A} \quad (18.15)$$

unde P/A reprezintă densitatea fluxului de putere, iar $\langle f|\mathbf{d}|n\rangle$ elementele de matrice ale tranziţiei de dipol între cele două stări $|f\rangle$ şi $|n\rangle$. Mărimile care intervin în relaţiile (18.7)—(18.15) sînt date în unităţi ale sistemului c.g.s.

Pentru a deduce regulile de selecţie care guvernează tranziţiile bifotonice, trebuie să ţinem seama că elementele de matrice ale tranziţiilor de dipol, care caracterizează interacţia dintre cîmp şi substanţă, se transformă la fel ca şi componentele tensorului ireductibil $T_1^{(q)}$, cu $q = -1$ pentru direcţia de polarizare σ^-, $q = +1$ pentru σ^+ şi $q = 0$ pentru π. Astfel, prin aplicarea acestui operator, $T_1^{(q)}$, momentul cinetic orbital trebuie să varieze cu ± 1, iar prin aplicarea lui încă o dată, ca în cazul tranziţiilor bifotonice, se obţine următoarea regulă de selecţie

$$\Delta L = 0 \text{ sau } \pm 2. \quad (18.16)$$

În plus, mai trebuie pusă şi condiţia:

$$\Delta m_L = q_1 + q_2 \quad (18.17)$$

unde q_1 şi q_2 iau valorile $+1$, -1 şi 0 pentru cele trei direcţii de polarizare σ^+, σ^- şi π.

Întrucît hamiltonianul nu acţionează asupra variabilelor de spin, chiar şi în cîmpuri magnetice exterioare puternice, numerele cuantice magnetice de spin ale electronului şi nucleului rămîn neschimbate. Deci

$$\Delta m_S = \Delta m_I = 0. \tag{18.18}$$

În cazul în care mărimea interacţiilor spin-orbită $\lambda\mathbf{LS}$ şi hiperfină $A\mathbf{IS}$ sînt comparabile cu mărimea despicării Zeeman, reprezentînd stările atomice prin vectorii $|L, S, I, m_L, m_I\rangle$, cu ajutorul coeficienţilor Clebsch—Gordan şi teorema lui Wigner—Eckart se pot obţine regulile de selecţie pentru momentul cinetic total $\mathbf{F} = \mathbf{L} + \mathbf{S} + \mathbf{I}$ şi $m_F = m_L + m_S + m_I$ sub forma [161]

$$|\Delta F| \leqslant F \text{ şi } \Delta m_F = q_1 + q_2. \tag{18.19}$$

Aceste reguli de selecţie pentru diferite valori ale numerelor cuantice sînt prezentate în tabelul 18.1.

Tabelul 18.1

Tipul tranziţiei	Tranziţii permise	Tranziţii interzise
$\Delta L = 2$ $\Delta L = 1$ $\Delta L = 0$ $\Delta M_F \neq 0$	$F \leqslant 2$ $\Delta M_F = q_1 + q_2$	$F = 0 \rightarrow F' = 0$ $F = 0 \rightarrow F' = 1$ $F = \frac{1}{2} \rightarrow F' = \frac{1}{2}$ $\left\{ F, M_F = 0 \rightarrow F' = F + 1, \; M_{F'} = 0 \right.$ (F întreg) $\left\{ F, M_F = -(1/2) \rightarrow F' = F, M_{F'} = \frac{1}{2} \right.$ (F semiîntreg)
$L_1 = L_2 = 0$	$\Delta F = 0$ $\Delta M_F = q_1 + q_2 = 0$	

Pentru diferite cazuri particulare regulile de selecţie considerate mai sus depind de proprietăţile stărilor iniţiale şi finale. Astfel, chiar dacă valorile energiilor care apar la numitorii formulelor (18.13) şi (18.14) sînt aceleaşi pentru toţi termenii multipletului stării intermediare $|n\rangle$, însumarea după toate substările acestuia nu schimbă regulile de selecţie cu condiţia ca : $\hbar(\omega_{ng} - \omega_1) \gg \lambda$; A şi $\hbar(\omega_{ng} - \omega_2) \gg \lambda$; A (λ şi A fiind constantele interacţiilor spin-orbită şi respectiv hiperfină).

În lucrările [177—189] sînt prezentate metodele experimentale mai importante care sînt folosite în spectroscopia bifotonică.

19. BĂTĂI CUANTICE

Așa cum a fost prezentată în § 15.5, metoda bătăilor cuantice crează posibilitatea eliminării lărgirilor liniilor spectrale datorită efectului Doppler și constă în excitarea sistemului cuantic cu ajutorul unei radiații laser cu lungimea de undă potrivită, într-o superpoziție coerentă de substări și detectarea modului în care evoluează sistemul pe baza modulației intensității radiațiilor obținute în urma fluorescenței. Cu ajutorul acestei metode se pot determina timpii de viață ai nivelelor excitate, se pot măsura polarizabilități, se studiază procesele de ciocnire și altele. În comparație cu alte tehnici de investigare a structurii hiperfine a nivelelor energetice în acest caz excitarea sistemului nu trebuie făcută cu o radiație laser riguros monocromatică. Avantajele acestei metode sînt limitate de posibilitățile de selecție a despicărilor energetice la frecvențe foarte mici și de faptul că nu poate fi folosită la determinarea intervalelor de frecvență în domeniul optic.

19.1. Tratarea fenomenului de bătăi cu ajutorul teoriei electrodinamicii cuantice

Întrucît fenomenul de bătăi cuantice se poate observa în urma modificării intensității luminii emise de un sistem de atomi excitați în impulsuri, el poate fi privit ca un efect cuantic de interferență care apare în fenomenul de fluorescență atomică.

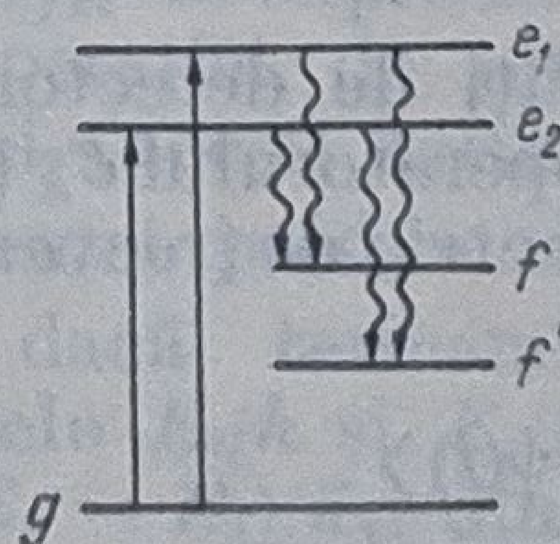


Fig. 19.1

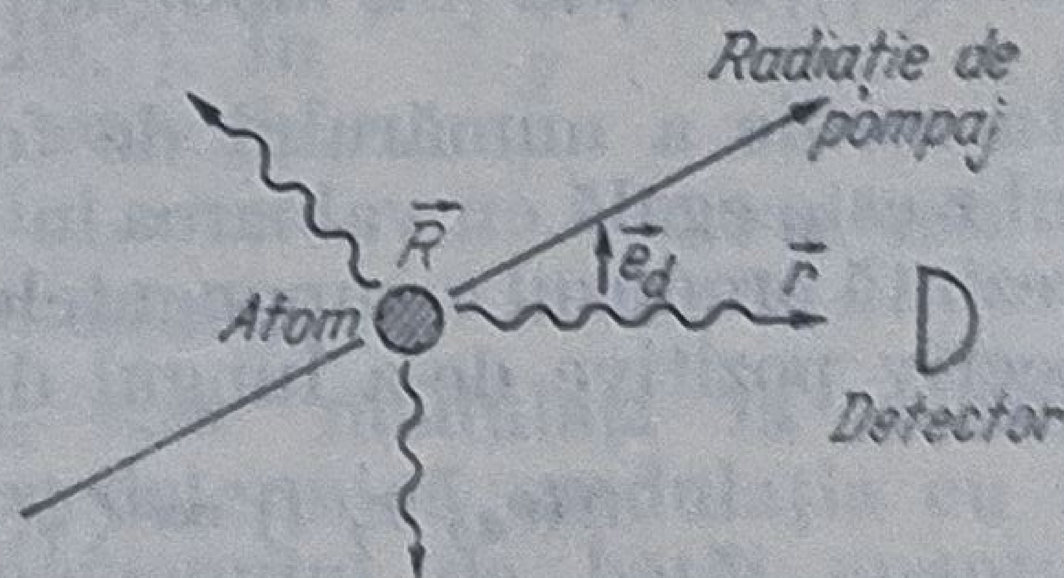


Fig. 19.2

În cazul unui atom, a cărui diagramă energetică este prezentată în fig. 19.1, prin excitarea acestuia cu un puls scurt de lumină, trece într-o superpoziție coerentă de stări excitate $|e_i\rangle$ ale căror energii E_i diferă puțin unele față de altele. După excitare, atomul emite lumină urma dezexcitării spontane (fig. 19.2) și trece în diferite stări inferioare $|f\rangle$,

$|f'\rangle$ ale căror energii sînt E_f, $E_{f'}$. Cu ajutorul unui filtru cu bandă largă și un polarizor se pot selecta radiații corespunzătoare unei anumite stări finale $|f\rangle$ și care au o polarizare dată $\mathbf{e}_d$. Radiațiile astfel filtrate sînt detectate cu un fotomultiplicator FM aflat în punctul $\mathbf{r}$. Intensitatea semnalului detectat $S(\mathbf{e}_d, r, t)$ poate fi calculată cu ajutorul teoriei electrodinamicii cuantice.

La momentul $t = 0$, se consideră că atomul se află în starea descrisă de funcția de undă

$$|\psi(0)\rangle = \sum_i \alpha_i |e_i, 0\rangle \quad (i = 1, 2) \tag{19.1}$$

unde $|e_i, 0\rangle$ caracterizează substarea $|e_i\rangle$, iar α_i reprezintă amplitudinea de probabilitate ca atomul să treacă în substarea $|e_i\rangle$ sub acțiunea luminii.

Evoluția în timp a atomului este descrisă de funcția de undă

$$|\psi(t)\rangle = \sum_i \alpha_i e^{-iE_i t/\hbar - \gamma t/2} |e_i, 0\rangle + \sum_{f,k\varepsilon} C_{fk\varepsilon}(t) |f, k\varepsilon\rangle. \tag{19.2}$$

În relația (19.2), $\tau = 1/\gamma$ reprezintă timpul de viață al substărilor e_i, iar $C_{fk\varepsilon}(t)$ este amplitudinea probabilității ca la momentul t atomul să fie în starea finală $|f\rangle$ sub acțiunea unui foton care are vectorul de undă k și polarizarea ε.

Amplitudinea de probabilitate poate fi calculată cu ajutorul relației lui Wigner—Weisskopf sub forma [147]

$$C^i_{fk\varepsilon}(t) = \sum_i \alpha_i \mathcal{E}_k \langle f | \varepsilon \mathbf{d} | e_i \rangle e^{-i\mathbf{kR}} \times \frac{e^{-i(E_f + \hbar ck)t/\hbar} - e^{-iE_i t/\hbar - \gamma t/2}}{\hbar ck - (E_i - E_f) + i\hbar\gamma/2} \tag{19.3}$$

unde $\mathcal{E}_k$ este intensitatea cîmpului electric asociat unui foton cu frecvența $\hbar ck$. Cei doi termeni care determină amplitudinea probabilității de a găsi un foton în starea $|k\varepsilon\rangle$ corespund emisiei dintr-o stare excitată $|e_i\rangle$ $(i=1, 2)$ iar la rezonanță (care are loc pentru frecvența $\hbar ck = E_1 - E_f$ cu o lărgime $\hbar\gamma$), aceștia sînt modulați cu frecvența stării excitate $\frac{E_i}{\hbar}$.

Rata medie a numărului de fotoni înregistrați de detectorul aflat în punctul $\mathbf{r}$ este egală cu valoarea în acel punct a operatorului $\mathcal{E}_d^-(r)\,\mathcal{E}_d^+(r)$, care reprezintă produsul componentelor cîmpului electric de frecvențe negative respectiv pozitive de-a lungul direcției $\mathbf{e}_d$

$$S(\mathbf{e}_d, r, t) = \langle \psi(t) | \mathcal{E}_d^-(r)\, \mathcal{E}_d^+(r) | \psi(t) \rangle. \tag{19.4}$$

Exprimînd componentele $\mathcal{E}_d^+(r)$ și $\mathcal{E}_d^-(r)$ cu ajutorul modurilor normale ale cîmpului electromagnetic

$$\mathcal{E}_d^+(r) = \sum_{k\varepsilon} \mathcal{E}_k \varepsilon_d a_{k_\varepsilon} e^{ikr} \tag{19.5}$$

$$\mathcal{E}_d^-(r) = \sum_{k'\varepsilon'} \mathcal{E}_{k'} \varepsilon'_d a^+_{k'\varepsilon'} e^{-ik'r}, \tag{19.6}$$

$a^{+}_{k\varepsilon}$ și $a_{k\varepsilon}$ fiind operatorii de creare și respectiv anihilare a modului $k\varepsilon$ și ținînd seama de relația (19.3) se obține pentru semnalul detectat expresia

$$S(\mathbf{e}_d, r, t) = \frac{1}{(4\pi\varepsilon_0)^2} \cdot \frac{k_0^4}{r_0^2} \sum_f \sum_{ij} \langle f|\mathbf{e}_d\mathbf{d}|e_i\rangle \alpha_i \alpha_j^* \times$$

$$\times \langle e_j|\mathbf{e}_d\mathbf{d}|f\rangle\, \theta\left(t - \frac{r_0}{c}\right) \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_{ij}\left(t-\frac{r_0}{c}\right)} \mathrm{e}^{-\left(t-\frac{r_0}{c}\right)}\,. \tag{19.7}$$

În relația (19.7), $r_0 = |R - r|$ reprezintă distanța dintre atom și detector, $k_0 = (E_e - E_f)/\hbar c$ este media numerelor de undă ale tranzițiilor detectate în domeniul optic, $\omega_{ij} = (E_i - E_j)/\hbar$ este frecvența Bohr corespunzătoare despicărilor între stările e_i și e_j, iar $\theta\left(t - \frac{r_0}{c}\right)$ este funcția lui Heaviside

$$\theta\left(t - \frac{r_0}{c}\right) = \begin{cases} 1, & \text{pentru } t > \frac{r_0}{c} \\ 0, & \text{pentru } t < \frac{r_0}{c} \end{cases}. \tag{19.8}$$

Operația de însumare are loc după toate stările finale selectate de filtrul plasat în fața detectorului și funcție de aranjamentul experimental, poate să conțină sau nu starea fundamentală.

Expresia semnalului detectat astfel obținută poate fi aplicată în cazul unui număr arbitrar de stări excitate $|e_i\rangle$ și reprezintă o curbă exponențială modulată de funcții sinusoidale a căror perioadă este $2\pi/\omega_{if}$.

Interpretarea fizică a fenomenului de modulație poate fi făcută ținînd seama că radiația excitatoare este împrăștiată de atom pe două canale diferite corespunzătoare fiecărei stări excitate $|e_i\rangle$ (fig. 19.3).

În urma fenomenului de emisie, nu pot fi deosebite canalele și nici fotonii emiși de cele două nivele $|e_1\rangle$ și $|e_2\rangle$. Ținînd seama de postulatele mecanicii cuantice, amplitudinea semnalului rezultat este egală cu pătratul sumei amplitudinilor celor două procese care nu pot fi deosebite unul de celălalt. Aceasta conduce la interferența termenilor $C^{(i)}_{fk\varepsilon}$ și $C^{(j)}_{fk\varepsilon}$ în expresia semnalului (19.7). În urma operației de integrare după energia fotonului, acești termeni rezultați în urma interferenței produc modularea semnalului.

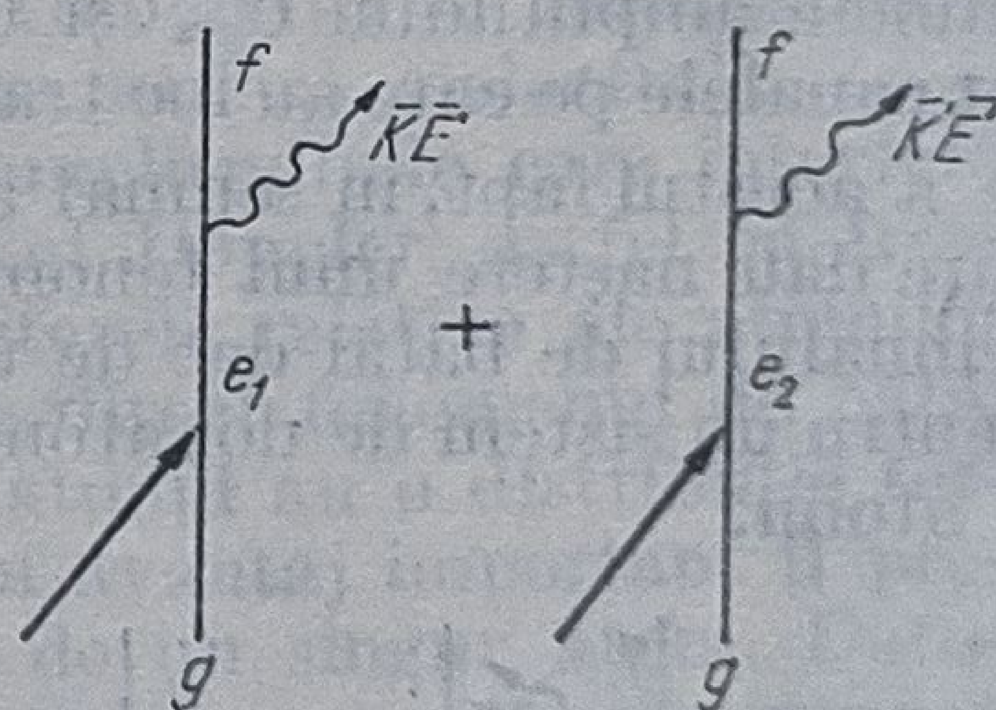


Fig. 19.3

Astfel, dacă termenii $C^{(i)}_{fk\varepsilon}$ și $C^{(j)}_{fk\varepsilon}$ sînt modulați la rezonanță cu frecvențele $E_i/\hbar$ și $E_j/\hbar$, produsul lor determină modulația cu frecvența $\omega_{ij} = (E_i - E_j)/\hbar$, dînd naștere fenomenului de bătăi cuantice. Deci fenomenul de bătăi cuantice poate apare numai ca urmare a despicării nivelelor excitate și nu poate să pună în evidență structura stărilor atomice fundamentale.

În cazul împrăștierii fotonilor de către un sistem de atomi, proprietățile fenomenului de bătăi cuantice „colective" sînt complet diferite de cele date de un singur atom, întrucît acesta poate să apară atît datorită despicării nivelelor excitate cît și a celui fundamental.

Pentru a calcula intensitatea semnalului în cazul fenomenului de bătăi cuantice „colective'' se consideră un ansamblu de doi atomi A și B care au două nivele energetice (fig. 19.1) și sînt localizați în punctele R_A și R_B. Ca urmare a iradierii cu un puls de scurtă durată, sistemul trece din starea fundamentală $|gg\rangle$ într-o stare excitată descrisă de funcția

$$|\psi(0)\rangle = \sum_i \alpha_{A_i} | e_i,\ g;\ 0\rangle + \sum_j \alpha_{B_j} | g,\ e_j;\ 0\rangle \qquad (19.9)$$

unde α_{A_i} și α_{B_j} sînt amplitudinile de probabilitate ca atomul A să fie excitat în starea $|e_i\rangle$, iar B în $|e_j\rangle$.

La momentul t, sistemul este descris de funcția

$$|\psi(t)\rangle = \sum_i \alpha_{A_i} e^{-iE_i t/\hbar - \gamma t/2} | e_i,\ g;\ 0\rangle +$$
$$+ \sum_j \alpha_{B_j} e^{-iE_j t/\hbar - \gamma t/2} | g,\ e_j;\ 0\rangle + \qquad (19.10)$$
$$+ \sum_{f,k\varepsilon} C^{A_i}_{fk\varepsilon}(t) | f,\ g;\ k\varepsilon\rangle + \sum_{fk'\varepsilon'} C^{B_j}_{fk'\varepsilon'}(t) | g, f;\ k'\varepsilon'\rangle.$$

Coeficienții $C^{A_i}_{fk\varepsilon}$ și $C^{B_j}_{fk\varepsilon}$ reprezintă amplitudinile parțiale pentru ca fotonul să fie împrăștiat de atomul A aflat în stara $|e_i\rangle$ sau de atomul B în starea $|e_j\rangle$ și pot fi calculați cu ajutorul relației (19.3).

Considerînd că se detectează fotonul emis în urma tranziției într-o stare finală $|f\rangle$ diferită de cea inițială (cazul împrăștierii neelastice), amplitudinile $C^{A_i}_{fk\varepsilon}$ și $C^{A_j}_{fk'\varepsilon'}$, corespund la două canale diferite, dacă atomii trec în stări atomice diferite $|fg\rangle$ și $|gf\rangle$, iar singurii termeni care interferă în semnal sînt de forma $C^{A_i}_{fk\varepsilon} C^{A_j}_{fk'\varepsilon'}$, sau $C^{B_i}_{fk\varepsilon} C^{B_j}_{fk'\varepsilon'}$. Deci, în procesul de împrăștiere neelastică, fenomenul de bătăi cuantice se datorește unui singur atom și nu este caracterizat de efecte colective.

În urma tranziției în starea inițială $|g\rangle$ (cazul împrăștierii elastice), ambele amplitudini $C^{A_i}_{gk\varepsilon}$ și $C^{B_j}_{gk'\varepsilon'}$, corespund aceleiași stări finale $|g\,g\rangle$, iar canalele pe care au loc tranzițiile nu pot fi deosebite (fig. 19.4). Ca urmare a acestui fapt, în semnal apar termeni de interferență de forma $C^{A_i}_{gk\varepsilon} C^{B_j}_{gk'\varepsilon'}$ care dau naștere unui fenomen de bătăi la frecvența ω_{ij} care se adaugă semnalului de bătăi dat de un singur atom. Considerațiile teoretice făcute pentru un sistem de doi atomi pot fi extinse și pentru un sistem format din n atomi.

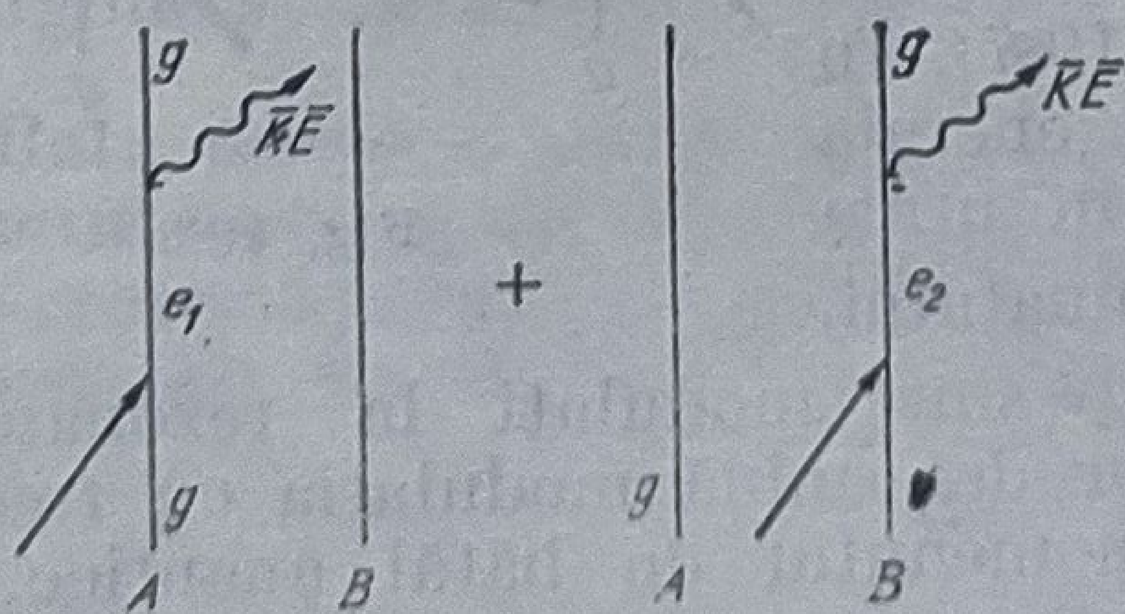


Fig. 19.4

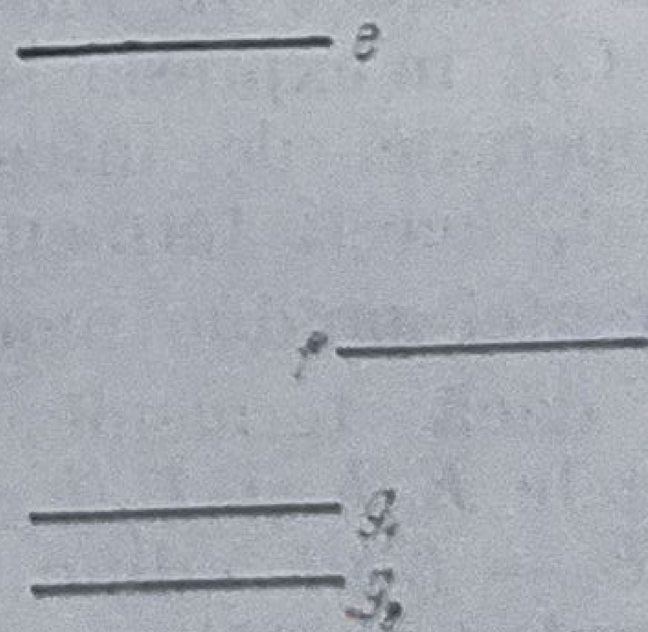


Fig. 19.5

Fenomentul de bătăi cuantice poate să apară într-un sistem de atomi și datorită despicării nivelului fundamental. Pentru a pune în evidență acest fapt se consideră un sistem de doi atomi ale căror stări excitate nu sînt despicate în timp ce starea fundamentală este despicată în două substări $|g_1\rangle$ și $|g_2\rangle$ (fig. 19.5).

Prin iradiere, sistemul trece din starea inițială $|g_1 g_2\rangle$ care reprezintă atomul A în starea $|g_1\rangle$ și atomul B în $|g_2\rangle$, într-o stare excitată $|e\rangle$, în care poate să se afle atît atomul A cît și atomul B și care este descrisă de funcția de undă:

$$\psi|(0)\rangle = \beta_A|e, g_2; 0\rangle + \beta_B|e, g_1; 0\rangle. \qquad (19.11)$$

La momentul t, sistemul trece în starea

$$|\psi(t)\rangle = \beta_A\, e^{-iE_e t/\hbar - \gamma t/2}|e, g_2; 0\rangle + \beta_B e^{-iE_e t/\hbar - \gamma t/2} \times$$
$$\times |e, g_1; 0\rangle + (\sum_f \sum_{k\varepsilon} C^A_{fk\varepsilon}(t)|f, g_2; k\varepsilon\rangle + \sum_{f'} \sum_{k'\varepsilon'} C^B_{f'k'\varepsilon'}(t) \times$$
$$\times |g_1, f'; k'\varepsilon'\rangle. \qquad (19.12)$$

Și în acest caz se constată atît împrăștierea neelastică a fotonilor, corespunzătoare la două canale diferite, determinate de două stări finale diferite $|fg_2\rangle$ și $|g_1 f'\rangle$, cît și cea elastică, care generează fenomenul de bătăi cuantice colective, la frecvența $\omega_{g_1 g_2} = (E_{g_1} - E_{g_2})/\hbar$.

Intensitatea semnalului detectat în urma fenomenului de bătăi cuantice este funcție și de distanța relativă dintre particule, (considerate fixe la început) și detector, întrucît amplitudinile de emisie în cazul a doi atomi A și B, de exemplu, sînt proporționale cu e^{ikR_A} și e^{ikR_B}. Deci fiecare termen de forma $C^A_{fk\varepsilon} \cdot C^B_{fk'\varepsilon'} \cdot e^{i(k-k')r}$ care apare în expresia semnalului conține un factor $e^{ik(R_A - r)} \times e^{ik'(R_B - r)}$ care caracterizează propagarea de la atomii A și B la detectorul aflat în punctul r. Dacă cei doi atomi se află la distanța $|R_A - R_B| \gg \lambda = \dfrac{2\pi}{k}$, diferența $|R_A - r| - |R_B - r|$ variază foarte rapid cu poziția detectorului și pentru două puncte apropiate r_1 și r_2 se obțin fenomene de bătăi defazate unele față de altele, iar fotomultiplicatorul nu mai poate detecta semnalul rezultat. În comparație cu fenomenul de bătăi cuantice determinat de un singur atom, în cazul unui sistem de atomi aceștia trebuie să se găsească la o distanță mai mică decît λ pentru a se obține un semnal „colectiv".

În cazul particulelor aflate în mișcare, amplitudinile care interferă $C^A_{gk\varepsilon}$ și $C^B_{gk'\varepsilon'}$ sînt modificate datorită efectului Doppler, astfel că frecvența fenomenului de bătăi va depinde de vitezele relative ale atomilor A și B, astfel încît este imposibil să se descrie direct fenomenul de bătăi „colective" într-o probă macroscopică în care atomii au o distribuție termică a vitezelor. Din acest punct de vedere un avantaj important îl prezintă fenomenul de bătăi cuantice determinat de un singur atom. Datorită efectului Doppler, fenomenul de bătăi cuantice care este determinat de un ansamblu de atomi nu ar putea fi pus în evidență experimental cu ajutorul fluorescenței decît în cazul cristalelor (cînd atomii sînt ficși în spațiu) și în cazul utilizării unor fascicule atomice monocinetice.

19.2. Aplicarea formalismului matricei densitate la calculul intensității semnalului de bătăi cuantice determinate de un singur atom

Pentru a calcula intensitatea semnalului bătăilor cuantice determinate de un singur atom (19.7), trebuie determinate amplitudinile de probabilitate α_i și α_j, care depind de caracteristicile pulsului luminos de

pompaj (polarizare, intensitate, profil spectral), precum și totalitatea stărilor după care are loc operația de însumare. Calculele care trebuie efectuate, pot fi mult simplificate dacă se utilizează pentru descrierea fenomenului de bătăi cuantice formalismul matricei densitate, întrucît semnalele optice în experiențele de fluorescență sînt proporționale cu valoarea medie a unor observabile atomice, de exemplu, pătratul proiecției momentului de dipol corespunzător tranziției într-o stare excitată $|e\rangle$. Aceste mărimi pot fi exprimate cu ajutorul elementelor matricei densitate $\rho_e(t)$ în stare excitată. Evoluția în timp a elementelor matricei densitate este descrisă de un set de ecuații diferențiale liniare (numite și ecuațiile de pompaj optic), iar soluția acestor ecuații permite calculul explicit, funcție de timp a intensității semnalului de fluorescență întrucît matricea densitate poate fi reprezentată cu ajutorul unei dezvoltări după un set de operatori tensoriali cu simetrie sferică.

Cu ajutorul matricei densitate (anexa 1) produsul $\alpha_i \alpha_j^*$ poate fi exprimat sub forma [147]

$$\alpha_i \alpha_j^* = \langle e_i | \rho_e(0) | e_j \rangle \tag{19.13}$$

astfel încît relația (19.7) devine

$$S(\mathbf{e}_d, t) = \frac{1}{(4\pi\varepsilon_0)^2} \cdot \frac{k_0^2}{r_0^2} \sum_{i,j} (\mathrm{e}^{-i\omega_{ij}t} \langle e_i | \rho_e(0) | e_j \rangle \, \mathrm{e}^{-\gamma t}) \times \times (\sum_f \langle e_j | \mathbf{e}_d \mathbf{d} | f \rangle \langle f | \mathbf{e}_d^* \mathbf{d} | i \rangle. \tag{19.14}$$

În relația (19.14), prima paranteză reprezintă elementele matricei densitate ρ_e între stările $|e_i\rangle$ și $|e_j\rangle$ la momentul t

$$\langle e_i | \rho_e(t) | e_j \rangle = \mathrm{e}^{-i\omega_{ij}t} \langle e_i | \rho_e(0) | e_j \rangle \, \mathrm{e}^{-\gamma t}. \tag{19.15}$$

iar $\mathbf{d}$ operatorul momentului de dipol al atomului.
Acestea pot fi scrise sub formă mai compactă cu ajutorul așa-numitului operator de „detecție" a stării atomice excitate

$$\mathscr{L}(\mathbf{e}_d) = \frac{1}{(4\pi\varepsilon_0)^2} \cdot \frac{k_0^2}{r_0^2} \sum_f \mathbf{e}_d \mathbf{d} | f \rangle \langle f | \mathbf{e}_d^* \mathbf{d} \tag{19.16}$$

astfel

$$S(\mathbf{e}_d, t) = \mathrm{Urm} \; [\rho_e(t) \mathscr{L}(\mathbf{e}_d)]. \tag{19.17}$$

În acest caz modulațiile semnalului de fluorescență se datoresc evoluției în timp a efectelor de coerență atomice determinate de elementele matricei densitate $\langle e_i | \rho_e(t) | e_j \rangle$ ale sistemului excitat de radiații cu frecvențele ω_{ij} corespunzătoare diferitelor subnivele. În urma precesiei momentului atomic de dipol de-a lungul direcției $\mathbf{e}_d$, se produce o modulație a pătratului acestui moment, astfel încît atomul emite lumină după o direcție determinată, avînd frecvența egală cu frecvențele proprii.

Pentru a calcula explicit intensitatea semnalului dată de relația (19.17) trebuie cunoscută dependența de timp a operatorului densitate $\rho_e(t)$, de fapt expresia acestui operator la momentul inițial $\rho_e(0)$, cu ajutorul căreia se poate determina $\rho_e(t)$ din (19.15).

Întrucît pentru descrierea evoluției sistemului atomic în urma procesului de excitare trebuie cunoscute precis caracteristicile pulsului, calculele se pot simplifica și mai mult dacă se consideră două cazuri limită:

pompaj (polarizare, intensitate, profil spectral), precum și totalitatea stărilor după care are loc operația de însumare. Calculele care trebuie efectuate, pot fi mult simplificate dacă se utilizează pentru descrierea fenomenului de bătăi cuantice formalismul matricei densitate, întrucît semnalele optice în experiențele de fluorescență sînt proporționale cu valoarea medie a unor observabile atomice, de exemplu, pătratul proiecției momentului de dipol corespunzător tranziției într-o stare excitată $|e\rangle$. Aceste mărimi pot fi exprimate cu ajutorul elementelor matricei densitate $\rho_e(t)$ în stare excitată. Evoluția în timp a elementelor matricei densitate este descrisă de un set de ecuații diferențiale liniare (numite și ecuațiile de pompaj optic), iar soluția acestor ecuații permite calculul explicit, funcție de timp a intensității semnalului de fluorescență întrucît matricea densitate poate fi reprezentată cu ajutorul unei dezvoltări după un set de operatori tensoriali cu simetrie sferică.

Cu ajutorul matricei densitate (anexa 1) produsul $\alpha_i \alpha_j^*$ poate fi exprimat sub forma [147]

$$\alpha_i \alpha_j^* = \langle e_i | \rho_e(0) | e_j \rangle \tag{19.13}$$

astfel încît relația (19.7) devine

$$S(\mathbf{e}_d, t) = \frac{1}{(4\pi\varepsilon_0)^2} \cdot \frac{k_0^2}{r_0^2} \sum_{i,j} (\mathrm{e}^{-i\omega_{ij}t} \langle e_i | \rho_e(0) | e_j \rangle \mathrm{e}^{-\gamma t}) \times \\ \times (\sum_f \langle e_j | \mathbf{e}_d \mathbf{d} | f \rangle \langle f | \mathbf{e}_d^* \mathbf{d} | i \rangle). \tag{19.14}$$

În relația (19.14), prima paranteză reprezintă elementele matricei densitate ρ_e între stările $|e_i\rangle$ și $|e_j\rangle$ la momentul t

$$\langle e_i | \rho_e(t) | e_j \rangle = \mathrm{e}^{-i\omega_{ij}t} \langle e_i | \rho_e(0) | e_j \rangle \mathrm{e}^{-\gamma t}. \tag{19.15}$$

iar $\mathbf{d}$ operatorul momentului de dipol al atomului.
Acestea pot fi scrise sub formă mai compactă cu ajutorul așa-numitului operator de „detecție" a stării atomice excitate

$$\mathscr{L}(\mathbf{e}_d) = \frac{1}{(4\pi\varepsilon_0)^2} \cdot \frac{k_0^2}{r_0^2} \sum_f \mathbf{e}_d \mathbf{d} | f \rangle \langle f | \mathbf{e}_d^* \mathbf{d} \tag{19.16}$$

astfel

$$S(\mathbf{e}_d, t) = \mathrm{Urm}\ [\rho_e(t) \mathscr{L}(\mathbf{e}_d)]. \tag{19.17}$$

În acest caz modulațiile semnalului de fluorescență se datoresc evoluției în timp a efectelor de coerență atomice determinate de elementele matricei densitate $\langle e_i | \rho_e(t) | e_j \rangle$ ale sistemului excitat de radiații cu frecvențele ω_{ij} corespunzătoare diferitelor subnivele. În urma precesiei momentului atomic de dipol de-a lungul direcției $\mathbf{e}_d$, se produce o modulație a pătratului acestui moment, astfel încît atomul emite lumină după o direcție determinată, avînd frecvența egală cu frecvențele proprii.

Pentru a calcula explicit intensitatea semnalului dată de relația (19.17) trebuie cunoscută dependența de timp a operatorului densitate $\rho_e(t)$, de fapt expresia acestui operator la momentul inițial $\rho_e(0)$, cu ajutorul căreia se poate determina $\rho_e(t)$ din (19.15).

Întrucît pentru descrierea evoluției sistemului atomic în urma procesului de excitare trebuie cunoscute precis caracteristicile pulsului, calculele se pot simplifica și mai mult dacă se consideră două cazuri limită:

a) pulsuri cu frecvența și faza bine definite și amplitudine care variază lent în timp ($\Delta = 1/T$).

b) pulsuri cu lărgime spectrală mare corespunzătoare timpului de corelație $\tau = 1/\Delta$ (Δ — lărgimea spectrală) mult mai mic decît durata pulsului T, ($\Delta \gg 1/T$).

În primul caz, astfel de pulsuri coerente sînt folosite în experiențe care pun în evidență ecoul fotonic și este necesară inducerea unui moment optic de dipol macroscopic, iar evoluția sistemului este descrisă de ecuațiile lui Bloch (cap. 1).

În cel de-al doilea caz se poate considera că pulsul este o funcție aleatoare de timp într-un interval de ordinul duratei pulsului T, iar sistemul este descris de ecuațiile ratelor [194] numite și ecuațiile de pompaj optic.

Din punct de vedere temporal, un puls laser este descris de trei parametri mai importanți : durata sa T (în care acesta interacționează cu atomii într-un interval cuprins între $t=-T$ și $t=0$), timpul de corelație $\tau = 1/\Delta$ și timpul de pompaj $T_p(t)$, care este invers proporțional cu densitatea spectrală instantanee a pulsului $u(\omega_0, t)$, corespunzătoare frecvenței ω_0 a tranziției optice și cu tăria oscilatorului tranziției respective, conform relației

$$\frac{1}{T_p(t)} = \frac{\pi}{\varepsilon_0 \hbar^2} u(\omega_0, t) |\langle e \| \mathbf{d} \| g \rangle|^2. \tag{19.18}$$

Pentru ca evoluția sistemului atomic să fie descrisă de ecuațiile ratelor în cazul excitării cu pulsuri de bandă largă, trebuie îndeplinite următoarele condiții

$$\Delta \gg 1/T \tag{19.19}$$

$$\Delta \gg 1/T_p \tag{19.20}$$

$$\frac{1}{T} \gg \gamma \tag{19.21}$$

$$\frac{1}{T} \gg \omega_{ij} \tag{19.22}$$

$$\Delta \gg \omega_{ij}. \tag{19.23}$$

Ultimele trei condiții arată că pot fi neglijate efectele legate de fenomenele de emisie spontană și de durata pulsului, precum și faptul că lărgimea benzii pulsului este suficient de mare pentru a acoperi structura stării excitate studiate.

Tratarea teoretică a fenomenului de bătăi cuantice este mult simplificată în cazul considerării unei interacții liniare între sistemul atomic și radiația laser (așa-numita limită a pompajului slab), cînd cel mult un singur foton din puls este absorbit în timpul T și este îndeplinită condiția

$$T_p(t) \gg T. \tag{19.24}$$

Descrierea evoluției elementelor matricei densitate a stării excitate poate fi făcută cu ajutorul ecuațiilor ratelor [147]

$$\frac{\mathrm{d}\rho_e}{\mathrm{d}t} = \frac{1}{T_p(t) G_g} P_e \mathbf{e}_0 \, \mathbf{d} P_g \mathbf{e}_0^* \, \mathbf{d} \, P_e. \tag{19.25}$$

În relația (19.25) e_0 determină polarizarea pulsului, P_e și P_g reprezintă proiectori în stările excitate și respectiv fundamentală, iar G_g este degenerarea stării fundamentale.

În urma integrării ecuației (19.25) se obțin elementele de matrice ale stării excitate

$$\rho_e(0) = \frac{K_0}{G_g} P_e \mathbf{e}_0 \mathbf{d} P_g \mathbf{e}_0^* \mathbf{d} P_e \tag{19.26}$$

unde

$$K_0 = \int_{-T}^{0} \frac{\mathrm{d}t}{T_p(t)} \tag{19.27}$$

reprezintă integrala temporală a ratei de pompaj.

Înlocuind formula (19.26) în relația (19.17) se poate calcula expresia semnalului fenomenului de bătăi cuantice sub forma

$$S(\mathbf{e}_d, t) = \frac{k_0^4 \cdot K_0}{(4\pi\varepsilon_0)^2 r_0^2 G_g} \sum_f \sum_{i,j} \sum_g \langle e_i | \mathbf{e}_0 \mathbf{d} | g \rangle \times$$
$$\times \langle g | \mathbf{e}_0^* \mathbf{d} | e_j \rangle \langle e_j | \mathbf{e}_d \mathbf{d} | f \rangle \langle f | \mathbf{e}_d^* \mathbf{d} | e_i \rangle \, \mathrm{e}^{-\gamma \cdot t - i\omega_{ij} t} . \tag{19.28}$$

În relația (19.28) operația de însumare se face după toate stările inițiale și finale.

Pentru a lua în considerare anizotropia stării fundamentale, care se manifestă în cazul proceselor de excitate în trepte, cînd starea excitată este definită prin intermediul unei stări $|g\rangle$, ,,orientată'' de un puls inițial de lumină polarizată, relația (19.26) trebuie modificată astfel

$$\rho_e(0) = K_0 P_e \mathbf{e}_0 \mathbf{d} P_g \rho_g(-T) P_g \mathbf{e}_0^* \mathbf{d} P_e \tag{19.29}$$

unde $\rho_g(-T)$ reprezintă elementul de matrice în starea $|g\rangle$ la momentul $(-T)$ anterior excitării.

În urma excitării sistemului atomic cu pulsuri laser intense, este posibil ca tranzițiile optice să sufere fenomenul de saturație. În acest caz condiția (19.23) nu mai este îndeplinită, iar descrierea evoluției sistemului atomic nu mai poate fi făcută cu ajutorul ecuațiilor ratelor (19.25) întrucît trebuie luat în considerare pe lîngă fenomenul de absorbție care determină trecerea atomilor din stare fundamentală în stare excitată și pe cel de emisie stimulată în urma căruia atomii trec din nou în starea fundamentală. De asemenea, tranzițiile virtuale care nu au loc la rezonanță pot determina deplasarea nivelelor atomice și pot afecta evoluția sistemului atomic în timpul duratei pulsului. Descrierea evoluției sistemului atomic în cazul excitării lui cu pulsuri intense se face cu ajutorul unor ecuații diferențiale liniare cuplate care să ia în considerare toate interacțiile posibile [147]. Procesele care apar în acest caz sînt foarte complexe, iar efectele de saturație sînt totuși mici dacă parametrul de saturație T/T_p nu are valori mari.

Pentru luarea în calcul a structurii fine a nivelelor energetice ale atomilor care suferă fenomenul de bătăi cuantice se consideră un sistem cuantic a cărui structură de nivele este prezentată în fig. 19.6.

Stările g, e și f ale căror momente cinetice sînt notate cu L_g, L_e și L_f au același moment de spin S și sînt despicate în urma interacției spin-orbită în substările corespunzătoare momentelor cinetice totale

notate cu J_g, J_e și J_f. Fiecare din aceste nivele, corespunzătoare acestor substări este de $(2J+1)$ ori degenerat, funcție de valorile numărului cuantic magnetic m_g. Semnalul obținut în urma fenomenului de bătăi cuantice în urma tranziției $e \leftrightarrow f$ este de fapt o sumă a contribuțiilor corespunzătoare tuturor acestor stări.

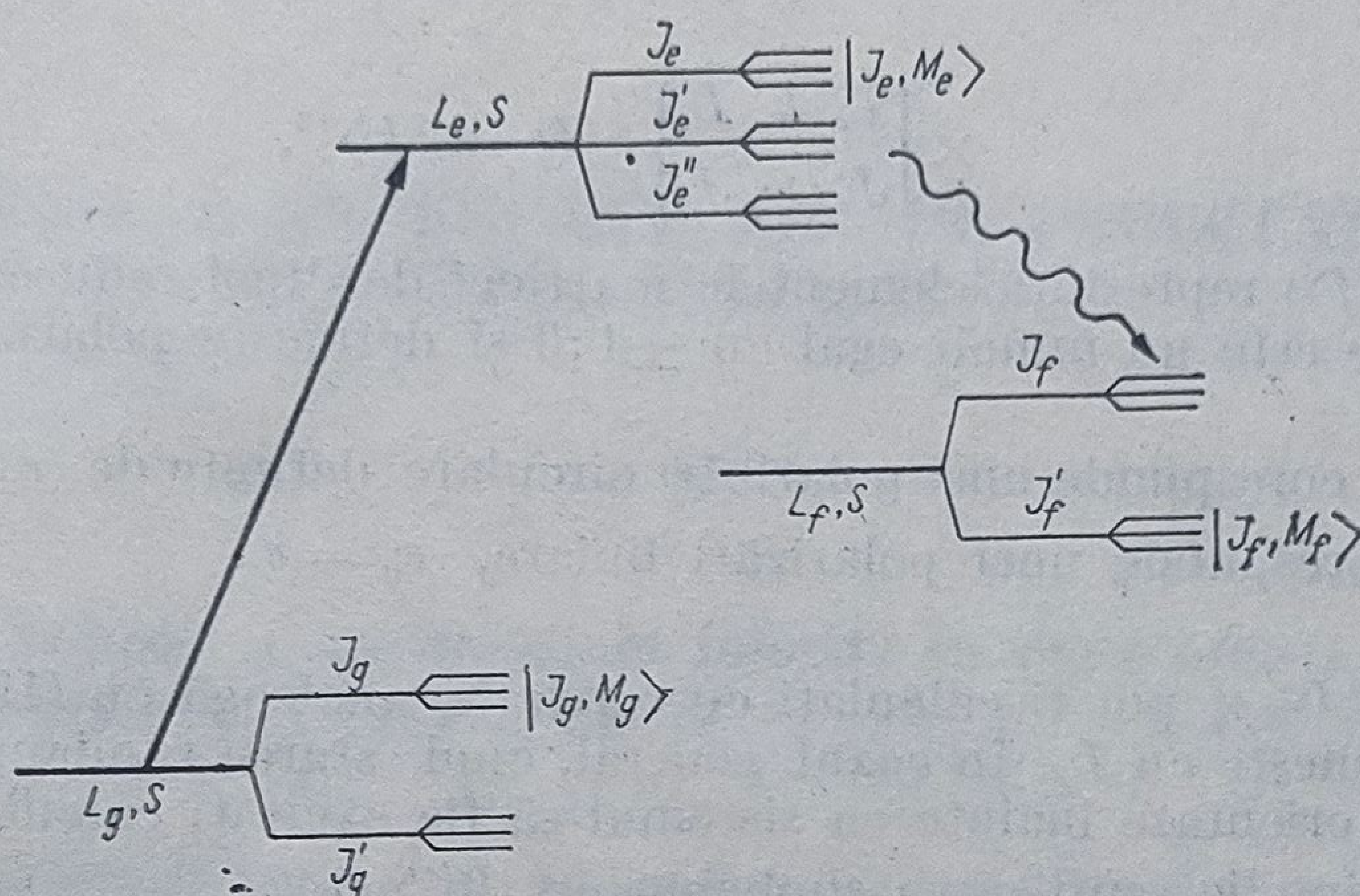


Fig. 19.6

Considerînd că stările excitate au multiplicitățile $|J_e, M_e\rangle$ și $|J_e', M_e'\rangle$ se poate defini operatorul T_q^k pentru atomul în stare exictată $|e\rangle$, prin relația

$$^{J_eJ_e'}T_q^k = \sum_{M_eM_e'} \sqrt{2k+1}\,(-1)^{J_e-M_e}\,|J_eM_e\rangle\langle J_e'M_e'| \begin{pmatrix} J_e & k & J_e' \\ -M_e & q & M_e' \end{pmatrix} \qquad (19.30)$$

în care parantezele rotunde ( ) determină simbolul „3j". Acești operatori formează un sistem de bază ortonormat în starea $|e\rangle$, satisfăcînd condiția

$$\text{Urm}\,\{^{J_eJ_e'}T_q^{k\;J_e''J_e'''}T_{q'}^{k'}\} = \delta_{J_eJ_e''}\,\delta_{J_e'J_e''}\,\delta_{kk'}\delta_{qq'} \qquad (19.31)$$

și se transformă în urma operației de rotație conform relației

$$R(\alpha,\beta,\gamma)^{J_eJ_e'}T_q^kR^{-1}(\alpha,\beta,\gamma) = \sum_{q'} R_{q'q}^{(k)}(\alpha,\beta,\gamma)^{J_eJ_e'}T_{q'}^k. \qquad (19.32)$$

Fiecare operator $^{J_eJ_e'}T_q^k$ are elemente de matrice numai între stările J_e și J_e', iar evoluția lui în timp, dacă nu sînt aplicate cîmpuri exterioare, este dată de

$$e^{-iH_0t/\hbar}\,{}^{J_eJ_e'}T_q^k e^{iH_0t/\hbar} = e^{-i\omega_{J_eJ_e'}t}\,{}^{J_eJ_e'}T_q^k \qquad (19.33)$$

(H_0 fiind hamiltonianul sistemului atomic).

Cu ajutorul operatorului $^{J_eJ_e'}T_q^k$, elementele matricei densitate în stare excitată $\rho_e(0)$ și operatorul de „detecție" $\mathscr{L}(e_d)$ pot fi exprimate sub forma:

$$\rho_e(0) = \sum_{J_eJ_e'}\sum_{k,q}{}^{J_eJ_e'}\rho_q^k(0)\,{}^{J_eJ_e'}T_q^k \qquad (19.34)$$

$$\mathscr{L}_q^k(e_d) = \sum_{J_eJ_e'}\sum_{k,q}{}^{J_eJ_e'}\mathscr{L}_q^k(e_d)\,{}^{J_eJ_e'}T_q^k \qquad (19.35)$$

unde coeficienții ${}^{J_eJ'_e}\mathscr{L}^k_q$ sînt dați de relația

$$ {}^{J_eJ'_e}\mathscr{L}^k_q(\mathbf{e}_Q) = (-1)^Q\,\delta_{q_0}\begin{pmatrix} k & 1 & 1 \\ 0 & Q & -Q \end{pmatrix}\begin{Bmatrix} k & 1 & 1 \\ L_f & L_e & L_e \end{Bmatrix}\times $$

$$ \times\begin{Bmatrix} L_e & k & L_e \\ J_e & S & J_e \end{Bmatrix}\ |\langle e\|\mathbf{d}\|f\rangle|^2. \qquad (19.36) $$

Aici $(\langle e\|\mathbf{d}\|f\rangle)$ reprezintă elementele matricei de dipol reduse între stările e și f, iar Q este un număr egal cu $\pm 1;0$ și definește polarizarea:

$$ Q = \begin{cases} \pm 1, \text{ corespunde unei polarizări circulare definite de } e_{\pm 1} = e_x \pm ie_y \\ 0, \text{ corespunde unei polarizări liniare, } e_0 = e_z. \end{cases} $$

Coeficienții ${}^{J_eJ'_e}\rho^k_q$ pot fi calculați cu o relație analoagă cu (19.36) în care L_f se înlocuiește cu L_g. În cazul general, cînd starea fundamentală g are o anumită orientare înainte ca sistemul să fie excitat, calculul coeficienților ${}^{J_eJ'_e}\rho^k_q$ implică utilizarea simbolurilor „9j'' [147].

Pe baza proprietăților operatorilor ${}^{J_eJ'_e}T^k_q$ pot fi deduse cîteva reguli simple care pot fi utilizate la calculul coeficienților $\mathscr{L}^k_q$ și ρ^k_q, astfel:

a) valorile lui k pentru care coeficienții $\mathscr{L}^k_q$ nu se anulează sînt $k = 0$; $k = L$; $k = 2$ (pentru $k > 2$ coeficienții „3j'' se anulează);

b) pentru o polarizare liniară $Q = 0$, există componente diferite de zero numai dacă $k=0$ și $k = 2$ întrucît coeficienții „3j'' se anulează pentru $k = 1$ și $Q = 0$;

c) dacă $k = 0$, suma coeficienților ${}^{J_eJ'_e}\mathscr{L}^k_q(\mathbf{e}_Q)$ după cele trei direcții de polarizare ortogonale ($Q = +1$, -1 și 0) este zero.

Folosind relațiile (19.17) (19.34) (19.35) poate fi calculată intensitatea semnalului obținut în urma fenomenului de bătăi sub forma

$$ S(\mathbf{e}_d, t) = \sum_{J_eJ'_e}\sum_{k=0}^{2}\sum_{q} {}^{J_eJ'_e}\rho^k_q(0)\,{}^{J_eJ'_e}\mathscr{L}^{k*}_q(\mathbf{e}_d)\,\mathrm{e}^{-i\omega_{J_eJ'_e}t-\gamma t}. \qquad (19.37) $$

Operația de însumare este formată din trei părți: una scalară ($k = 0$), una vectorială pentru $k = 1$ (care dă „orientarea'') și o altă parte tensorială pentru $k = 2$ (care dă „alinierea'').

Formalismul tensorial prezentat mai sus poate fi utilizat pentru a descrie structura hiperfină a fenomenului de bătăi, proprietățile unghiulare ale semnalului și procesele de ciocnire.

Întrucît detecția semnalului obținut în urma fenomenului de bătăi cuantice este mai potrivită pentru spectroscopia cu înaltă putere de rezoluție în care sînt implicate intervale energetice mici ale stărilor atomice și moleculare excitate, metodele folosite sînt asemănătoare cu cele folosite în experiențele de dublă rezonanță, intersecții de nivele, fluorescență modulată care elimină efectul Doppler.

V. FIZICA EXPERIMENTALĂ A PROCESELOR MULTIFOTONICE

20. METODE EXPERIMENTALE DE CERCETARE ÎN SPECTROSCOPIA NELINIARĂ

20.1. Tehnici experimentale folosite în generarea armonicilor optice şi mixarea optică

Studiul experimental al proceselor multifotonice este determinat atît de posibilitatea obţinerii radiaţiei coerente în domeniile ultraviolet şi infraroşu îndepărtat ale spectrului, cît şi de obţinerea unor informaţii legate de structura nivelelor energetice ale atomilor şi moleculelor şi verificarea unor modele teoretice pentru a căror investigare nu pot fi aplicate metodele clasice.

Armonica a treia ($\lambda = 2313$ Å) a fost generală prima dată cu ajutorul unui laser cu rubin ($\lambda = 6943$ Å) în funcţionarea Q-switch, într-un cristal de calcit. Întrucît lungimea de coerenţă este foarte mică (de aproximativ 1 μm) pentru a se obţine eficienţe de conversie cît mai ridicate a fost necesară focalizarea cît mai intensă a radiaţiei laser pe cristal pînă la limita determinată de distrugerea lui, iar acordul indicilor de refracţie corespunzători fundamentalei şi armonicii, s-a realizat printr-o orientare potrivită a probei. Cu toate acestea cele mai bune eficienţe de conversie au fost de $3 \cdot 10^{-6}$ [102].

Eficienţa conversiei generării armonicii a treia şi a celor de ordin superior poate fi mult îmbunătăţită dacă se folosesc ca medii de interacţie gazele nobile, vaporii metalelor alcaline, alcalino-pămîntoase sau mixturi ale acestora.

Funcţie de modul de lucru, generarea armonicilor poate avea loc utilizînd atît unde plane, cît şi fascicule focalizate. Este cunoscut faptul că la trecerea unei unde luminoase considerată plană între două puncte are loc o schimbare a fazei acesteia. În cazul fasciculelor gaussiene, schimbarea fazei este de 180° dacă cele două puncte se află la o distanţă egală cu parametrii confocali faţă de focar.

Întrucît polarizarea cu frecvenţa armonicii a treia generează unde a căror amplitudine este proporţională cu $E^3 \exp(3i\Phi)$, $E \exp(i\Phi)$, fiind cîmpul radiaţiei fundamentale care urmează a fi focalizată, rezultă că undele corespunzătoare acestei polarizări suferă o întîrziere de fază egală cu 3π în comparaţie cu polarizarea undei plane. Pe de altă parte, polarizarea corespunzătoare armonicii generează unde care sînt de asemenea focalizate şi suferă o întîrziere de fază egală cu π în comparaţie cu unda

plană care are frecvența armonicii. Deci, chiar dacă $\Delta\mathbf{k} = 0$, adică vitezele de fază ale fundamentalei și armonicii sînt egale, unda cu frecvența armonicii se propagă prin focar și înregistrează un avans de fază egal cu 2π față de polarizarea corespunzătoare fundamentalei. Astfel, radiația corespunzătoare armonicii generată în fața focarului o anulează pe cea din spatele lui și nu rezultă o generare netă a armonicii. Alegînd $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_3 - 3\,\mathbf{k}_1 < 0$ avansul de fază poate fi compensat și armonica poate fi generată în condiții optime dacă se respectă condițiile impuse de o focalizare puternică într-un mediu care are o dispersie negativă.

Obținerea unei focalizări optime în vederea producerii unei puteri maxime a armonicii a treia sau a celor de ordin superior în gaze este mult mai complicată decît în cazul generării armonicii a doua în cristale din cauza numărului mai mare de variabile implicate, cum ar fi de exemplu: lungimea mediului, concentrația atomilor care constituie mediul neliniar, concentrația atomilor gazului tampon, care se adaugă parametrilor ce determină focalizarea fasciculului.

Din relația (12.120) se observă că pentru o valoare dată a dezacordului $\Delta\mathbf{k}$, valoarea maximă a integralei I în cazul unei focalizări puternice se obține cînd $b\Delta k = -2$, iar $|I|^2 = 5{,}3$. Întrucît dezacordul este proporțional cu concentrația atomilor de gaz ce constituie mediul neliniar, este mai ușor de optimizat produsul dintre pătratul susceptibilității și pătratul integralei, $|\chi|^2\,|I|^2$, care apare în expresia eficienței conversiei, decît pătratul integralei. De fapt, condiția $b\Delta k = -2$ înseamnă focalizarea fasciculului într-un mediu a cărui dispersie este negativă, astfel încît parametrul confocal este egal cu lungimea de coerență $L_c = \pi/|\Delta k|$. În acest caz aria fasciculului este

$$A = \frac{\pi w_{10}^2}{2} = \lambda_L L_c/2\pi. \qquad (20.1)$$

Deși gazele care constituie mediul neliniar nu sînt supuse fenomenului de distrugere („damage”) puterea radiației de pompaj necesară obținerii unor eficiențe de conversie cît mai ridicate este limitată de anumite valori pentru care componentele optice care intră în montajul experimental suferă fenomenul de distrugere.

Practic, este mai ușor să se modifice dezacordul vectorilor de undă $\Delta\mathbf{k}$, prin introducerea unei anumite cantități de gaz tampon, care modifică corespunzător dispersia mediului neliniar din celula unde are loc interacția.

În cazul așa numitei focalizări confocale ($b = L$), eficiența conversiei este independentă de lungimea celulei, fiind satisfăcută relația $\Delta kL = -3{,}5$. Întrucît dezacordul $\Delta\mathbf{k}$ poate fi ajustat corespunzător, se pot folosi celule foarte lungi și intensități mici ale radiației de pompaj. Dacă mediul neliniar este constituit din vaporii metalelor alcaline, care au susceptibilități neliniare cu cîteva ordine de mărime mai mari decît ale celorlalte gaze, atunci lungimea celulei nu trebuie să fie prea mare pentru că aceștia prezintă benzi largi de absorbție a fundamentalei radiației de pompaj.

Dacă Δ**k** nu este zero, valoarea maximă pe care funcţia $L^2 \frac{\sin^2 \frac{\Delta kL}{2}}{\left(\frac{\Delta kL}{2}\right)^2}$ din relaţia (12.126) poate să o ia în cazul generării armonicii a treia este $\frac{4L_c^2}{\pi^2}$. Se observă că dacă dezacordul Δ**k** este diferit de zero, eficienţa conversiei este aceeaşi chiar dacă Δ**k** este pozitiv sau negativ ca şi în cazul focalizării puternice.

În primele experienţe de generare a armonicii a treia în gaze, celula care conţinea vaporii de Rb şi de Xe care constituiau mediul neliniar era confecţionată dintr-un tub de sticlă (pyrex) cu lungimea de 19 cm. Prin încălzire la 300°C sticla devine galbenă şi opacă pentru radiaţia ultravioletă [102].

Ulterior, pentru a evita dificultăţile legate de opacizarea ferestrelor laterale („fogging''), precum şi de menţinerea temperaturii constante în interiorul mediului neliniar, au fost construite alte tipuri de celule, una din ele fiind prezentată în fig. 20.1.

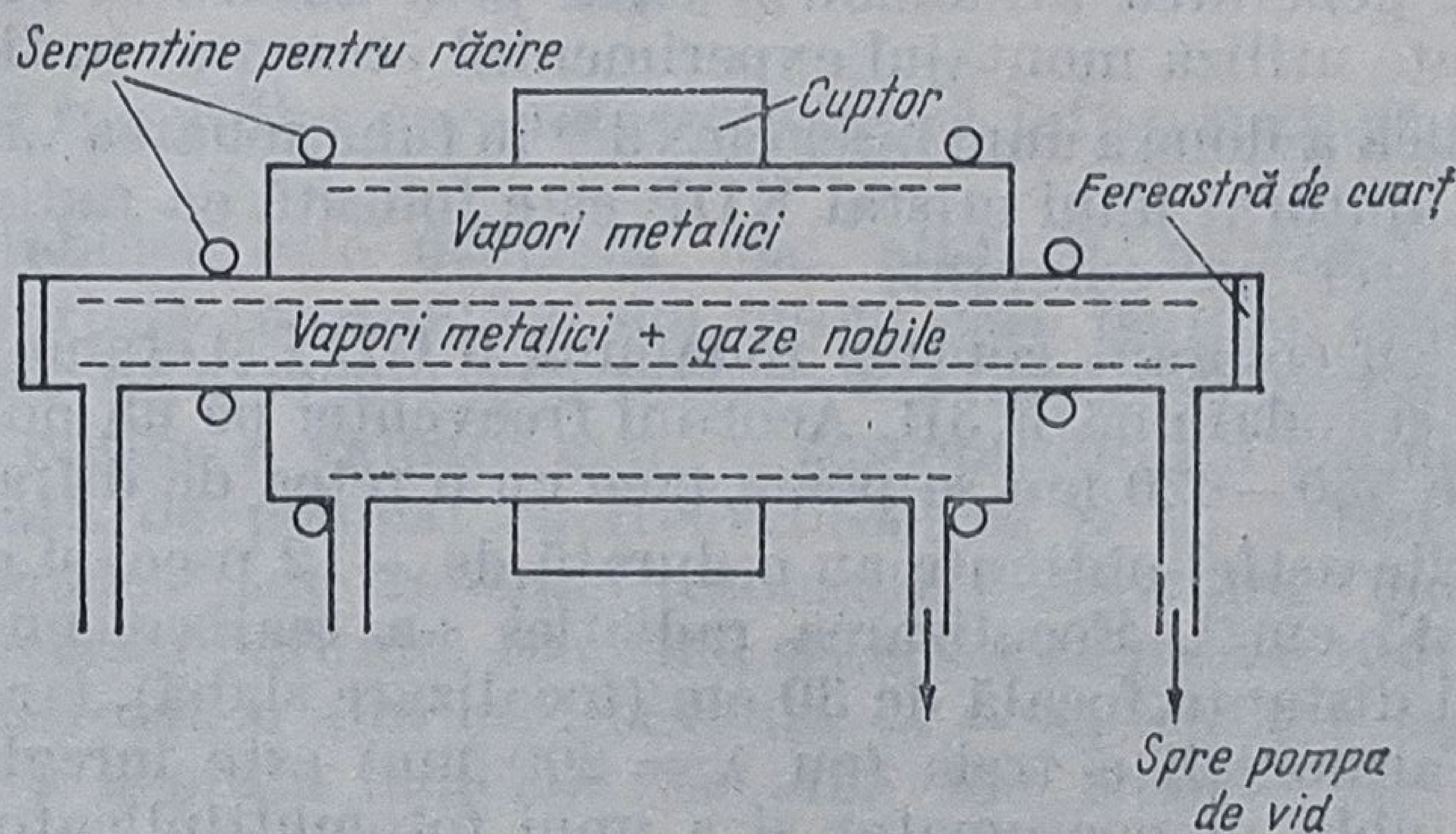


Fig. 20.1.

Aceasta este formată din două tuburi de oţel concentrice, cel interior avînd diametrul de 2,5 mm şi lungimea de 1,5 m, iar cel exterior avînd diametrul de 5 cm şi lungimea de 1 m. Cele două tuburi sînt prevăzute în interior cu site din fire de oţel care pe baza fenomenelor capilare asigură circulaţia vaporilor metalelor alcaline. Încălzirea se face cu ajutorul unei rezistenţe bobinate uniform pe tubul exterior astfel încît să asigure o temperatură uniformă cu o variaţie maximă de $\simeq 0{,}5$°C. La cele două capete ale celulei sînt introduse gaze nobile (Xe, Ar) pentru acordul indicilor şi pentru a împiedica opacizarea ferestrelor laterale cu vaporii metalelor alcaline. Răcirea capetelor celulei se face cu două serpentine prin care circulă apă. Folosind o astfel de celulă se poate obţine o coloană de mixtură cu lungimea de 50 cm care conţine vapori ai metalelor alcaline şi gaze nobile cu ajutorul căreia se realizează acordul indicilor pe aproximativ 100 de „lungimi de coerenţă'' (L_c). Eficienţa de conversie maximă ($\simeq 10\%$ a fost obţinută pentru densităţi ale radiaţiei de pompaj de $2 \cdot 10^{11}$ W/cm^2 (fig. 20.2) şi un raport al numărului de atomi de Xe şi Na de $150 \div 1$ (presiunea sodiului fiind de 5 torr).

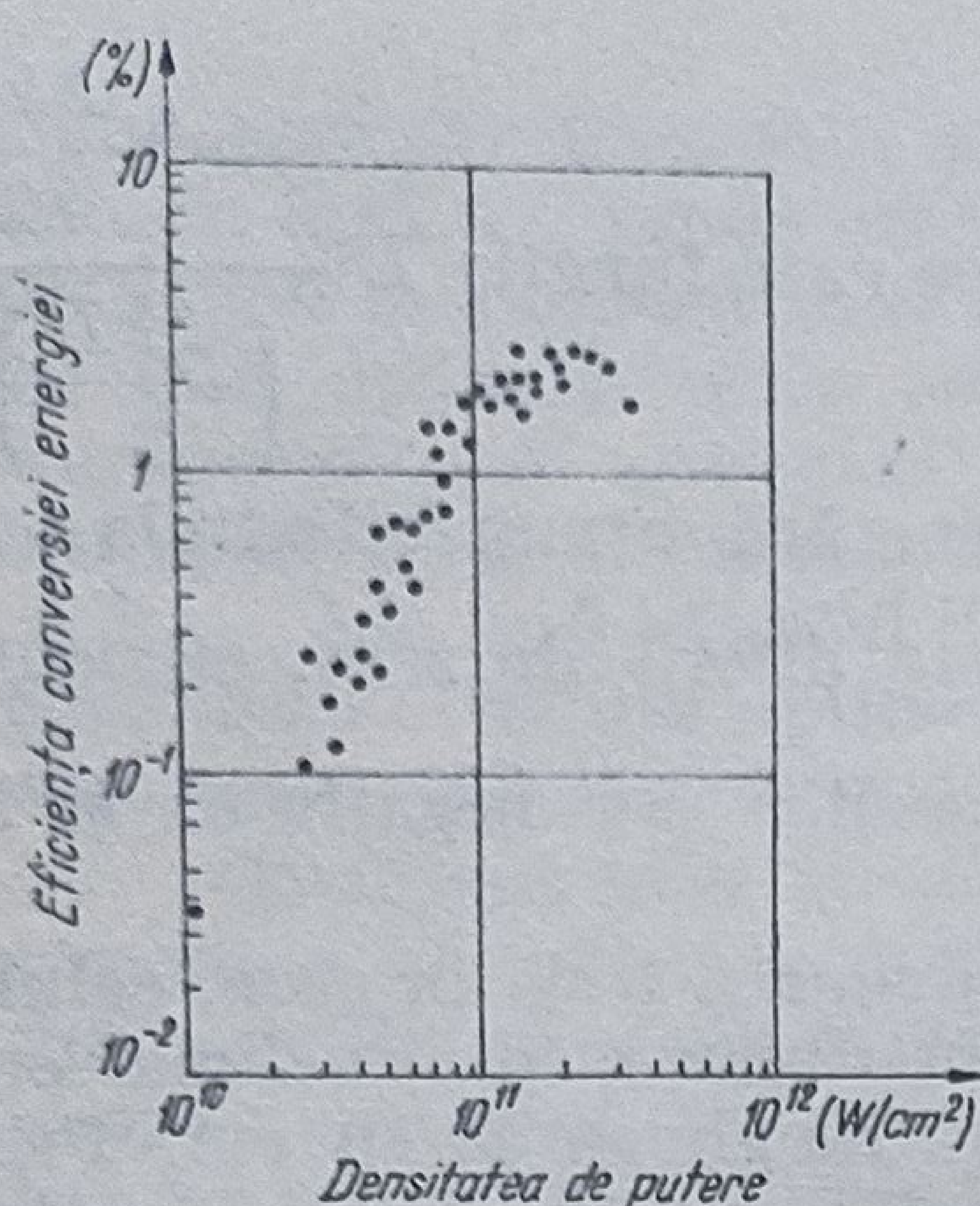


Fig. 20.2

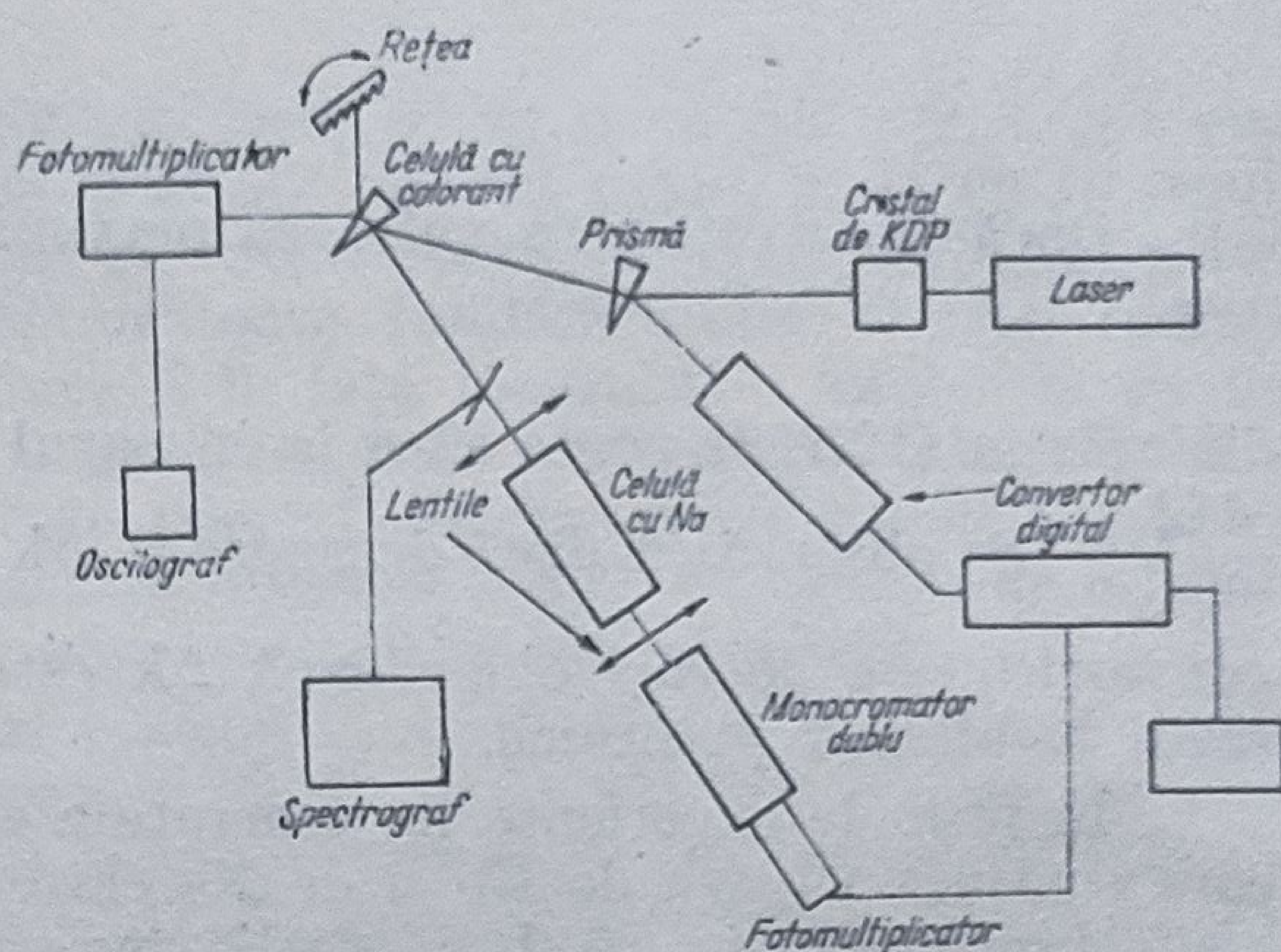


Fig. 20.3

Radiaţia de pompaj provenită de la un laser cu Nd:YAG în funcţionarea „mode-locking'', avînd pulsuri cu durata de 30 psec., a fost astfel focalizată, încît mărimea spotului să fie de $1{,}1 \cdot 10^{-3}$ cm^2.

Pentru generarea armonicii a treia prin absorbţia rezonantă a doi fotoni se poate utiliza montajul experimental prezentat în fig. 20.3 [102].

Armonica a doua a unui laser cu Nd^{3+} în funcţionarea „mode-locking'', obţinută cu ajutorul unui cristal KDP este folosită ca radiaţie de pompaj pentru un laser cu colorant.

Celula cu colorant conţine rodamină 6 GDN şi etanol în amestec cu rodamină B şi rodamină F 3B. Acordul frecvenţei pe un domeniu spectral cuprins între 550—620 nm se poate face cu o reţea de difracţie.

Pulsurile astfel obţinute au o durată de ~12 psec. şi o lărgime spectrală $\Delta\nu \approx 43$ cm^{-1}. Focalizarea radiaţiei s-a realizat cu ajutorul unei lentile avînd distanţa focală de 30 cm (focalizare slabă), iar radiaţia corespunzătoare armonicii a treia (cu $\lambda = 200$ nm) este înregistrată cu ajutorul unui dublu monocromator şi a unui fotomultiplicator. Cu ajutorul unui astfel de montaj experimental, folosindu-se o mixtură de Na şi Xe aflate în raportul 1 :53 la o temperatură de 441°C s-au obţinut eficienţe de conversie de ~8% şi puteri ale armonicii de $4{,}8 \cdot 10^4$ W. Absorbţia rezonantă a doi fotoni are loc între nivelele 3 s — 5 s şi prezintă un fenomen de saturaţie pentru intensităţi ale radiaţiei de pompaj de ordinul 10^2 GW/cm^2.

Instalaţia experimentală folosită pentru generarea armonicilor de ordin superior nu diferă prea mult faţă de cele prezentate anterior pentru generarea armonicii a treia. Dificultăţile care apar sînt legate de obţinerea unor radiaţii de pompaj cu intensităţi cît mai mari şi de înregistrarea armonicilor care se află în domeniul ultravioletului îndepărtat şi al razelor X ale spectrului.

Astfel, pentru înregistrarea armonicilor de ordinul cinci şi şapte ($\lambda_5 = 76$ nm, $\lambda_7 = 38$ nm) obţinute în celule cu gaze nobile cu ajutorul unui montaj experimental prezentat în fig. 20.4 spectrometrul şi celula trebuie menţinute la o presiune mai mică decît $5 \cdot 10^{-4}$ torr [102]

Acordul indicilor fundamentalei şi armonicilor de diferite ordine cu ajutorul gazelor tampon care compensează dispersia, produce anumite

dificultăți legate de menținerea uniformității mixturii componenților gazoși și de absorbția suplimentară determinată de lărgirea liniilor spectrale datorită presiunii.

Pentru evitarea dificultăților amintite mai înainte, acordul indicilor mai poate fi făcut în cazul unui singur component gazos prin alege-

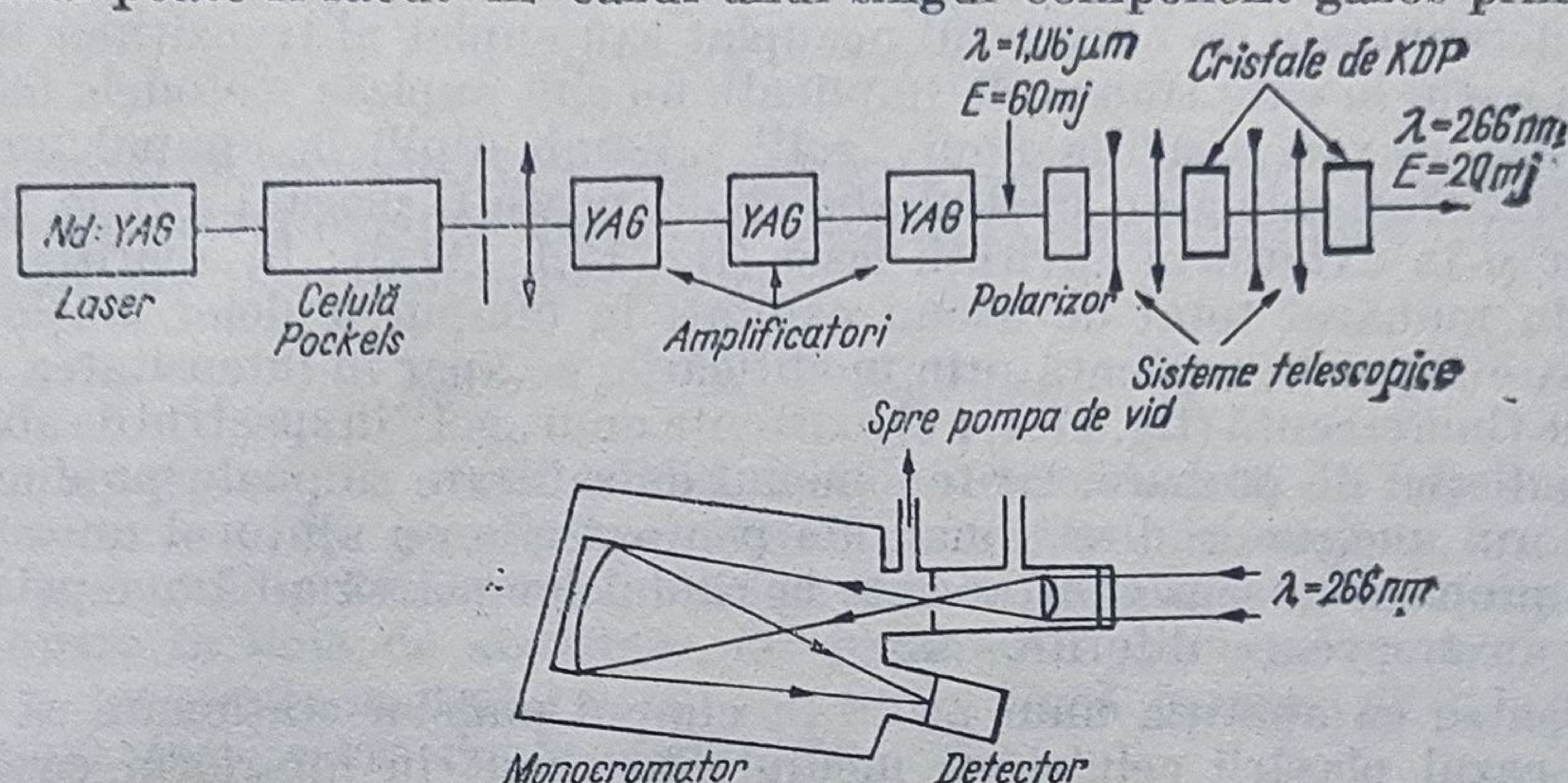


Fig. 20.4

rea frecvențelor radiațiilor care interacționează într-o regiune cu dispersie anormală.

Această tehnică este utilizată mai ales în procesele de mixare optică prin absorbția rezonantă a doi fotoni care permite obținerea radiației coerente într-un domeniu spectral larg, din infraroșu pînă în ultraviolet.

Pentru a obține o valoare mare a susceptibilității neliniare se folosesc două radiații de pompaj cu frecvențele ω_1 și ω_2 astfel alese încît $\omega_1 + \omega_2$ corespunde exact tranziției rezonante între starea fundamentală și finală care au aceeași paritate. Excitînd sistemul cu încă o radiație de frecvență ω_3 se generează o alta cu frecvența $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$.

Pentru ca acordul indicilor să aibă loc trebuie să fie îndeplinită condiția

$$n_4\omega_4 = n_1\omega_1 + n_2\omega_2 + n_3\omega_3.$$

Contribuțiile semnificative la indicele de refracție pentru fiecare din cele patru radiații considerate se obțin în urma tranzițiilor permise între starea fundamentală și o stare intermediară, care au parități opuse.

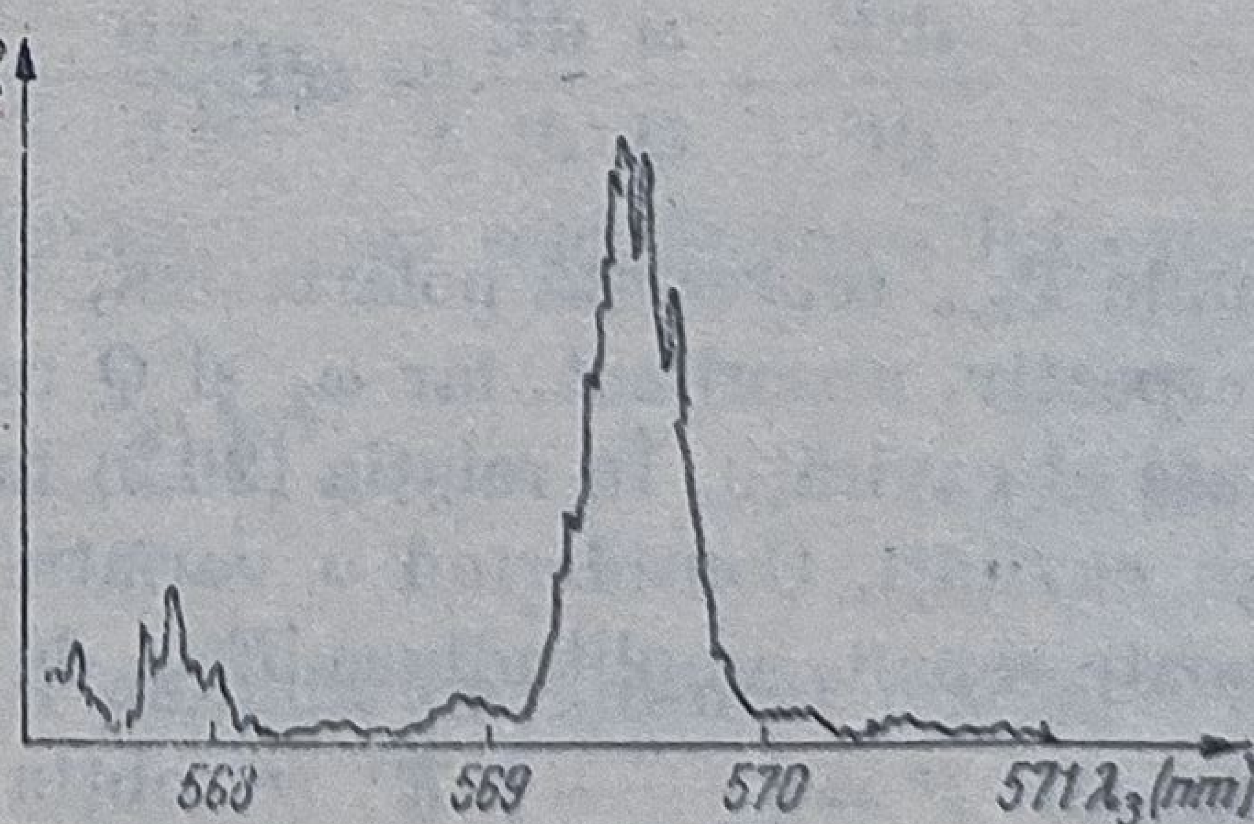


Fig. 20.5

Astfel, folosindu-se pentru radiația cu frecvența ω_2 un laser cu Nd : YAG ($\lambda = 1{,}06$ μm) și acordînd frecvența radiației ω_1 în așa fel încît $\omega_1 + \omega_2 = \Omega_{4s-3s}$ în vapori de Na se obține o radiație cu $\lambda = 231$ nm dacă pentru radiația cu frecvența ω_3 s-a considerat valoarea 570 nm. Puterea radiației (P_4) cu frecvența ω_4 are valori semnificative numai într-o mică regiune corespunzătoare unui punct în care acordul indicilor este exact (fig. 20.5) [102], [161].

Folosind pentru pompaj radiații cu puteri de ordinul kW puterea radiației generate este 0,02 W.

20.2. Tehnici experimentale folosite în spectroscopia laser prin metoda absorbției saturate

Pentru punerea în evidență a fenomenelor prezentate în capitolul 17 se folosesc diferite metode experimentale care se împart în două mari grupe, determinate de caracterul necuplat sau cuplat al tranzițiilor implicate. În cazul în care tranzițiile implicate nu sînt cuplate metodele folosite se bazează pe: a) apariția unui „gol" („Lamb dip") în cîmpul undelor staționare, cînd celula cu mediul absorbant poate fi plasată atît în interiorul, cît și în exteriorul cavității laser (fig. 17.1—17.3); b) apariția unui „gol" în numărul total de atomi excitați în cîmpul undelor staționare, care poate fi pus în evidență prin modificările ce apar în intensitatea spectrului de fluorescență (fig. 17.4); c) existența unui „gol" în spectrul de absorbție al radiației de probare, iar fenomenul de saturare se poate produce fie cu ajutorul unei unde direcționale de pompare fie cu ajutorul unor unde care se propagă în sens contrar care la rîndul lor pot să aibă aceeași frecvență sau frecvențe diferite.

Pentru ca apariția unui „gol" în cîmpul undelor staționare să aibă loc, în cazul plasării celulei cu mediul absorbant în interiorul cavității laser, trebuie îndeplinite următoarele condiții:

— linia de absorbție trebuie să coincidă cu linia care este amplificată de mediul activ;

— intensitatea cîmpului să fie suficient de mare pentru a produce saturarea absorbției;

— linia de absorbție trebuie lărgită neomogen prin efect Doppler.

Primele experiențe au fost efectuate cu ajutorul unei celule cu neon, care a fost plasată în interiorul unei cavități laser cu heliu-neon cu $\lambda = 6328$ Å și au pus în evidență fenomenul cunoscut sub numele de „Lamb-dip" inversat (cap. 17, fig. 17.2).

Puterea semnalului la ieșirea din celulă, lărgimea și înălțimea relativă a „picului" puterii se pot deduce pe baza modelului prezentat în lucrarea [178]. În interiorul cavității, cîmpul electric este descris de ecuația

$$\frac{d^2\mathbf{E}}{dt^2} + \frac{\omega}{Q}\frac{d\mathbf{E}}{dt} + \omega_c^2\mathbf{E} = -4\pi\left\langle\frac{d^2\mathbf{P}_a}{dt^2}\right\rangle - 4\pi\left\langle\frac{d^2\mathbf{P}_b}{dt^2}\right\rangle \quad (20.2)$$

unde $\mathbf{P}_{a,b}$ reprezintă polarizarea, indicii a și b se referă la mediul activ respectiv, absorbant, iar ω_c și Q reprezintă frecvența și factorul de calitate al cavității. În relația (20.2) medierea este făcută pe lungimea întregii cavități. Considerînd o variație lentă în timp a cîmpului electric, se poate separa amplitudinea $E(t)$, de faza $\Phi(t)$, și ținînd seama de definiția puterii $P = \left(\frac{c}{8\pi\hbar\omega}\right) E^2$ se obțin următoarele ecuații

$$\frac{dP}{dt} + \frac{\omega}{Q} P = cP[\langle K_a(P) - K_b(P)\rangle] \quad (20.3)$$

$$\omega - \omega_c + \frac{d\Phi}{dt} = -2\pi\omega(\chi_a' + \chi_b'). \quad (20.4)$$

Coeficientul de absorbţie $K(\omega)$ şi indicele de refracţie $n(\omega)$ sînt legaţi de partea reală, respectiv imaginară a susceptibilităţii prin relaţiile

$$K(\omega) = \frac{4\pi\omega}{c}\chi''(\omega) \quad (20.5)$$

$$n(\omega) - 1 = 2\pi\chi'(\omega). \quad (20.6)$$

Luînd în considerare numai stări staţionare ($dP/dt = 0$), puterea la ieşirea din celulă depinde de ceilalţi parametri care determină funcţionarea laserului printr-o relaţie de forma

$$\alpha_{ef} = K_a(P, \omega) - K_b(P, \omega) = \gamma_0 \quad (20.7)$$

unde : α_{ef} reprezintă amplitudinea efectivă determinată de cele două medii, iar $\gamma_c = \omega/Qc$, pierderile liniare pe unitatea de lungime. În general forma „picului'' puterii nu coincide cu forma „golului'' („Lamb-dip-''ului) care apare în linia de absorbţie, iar parametrii „picului'' puterii depind de caracteristicile mediului activ respectiv. Dacă parametrii de saturaţie corespunzători celor două medii sînt mici

$$G_a = g_a P \text{ şi } G_b = g_b P \ll 1 \quad (20.8)$$

adică amplificarea respectiv absorbţia sînt slabe, puterea poate fi calculată cu ajutorul relaţiei

$$P(\omega) = \frac{\gamma_0}{g_a K_{a0}} \cdot \frac{\eta - 1}{(2 - \beta) - \beta L\left(\frac{\omega - \omega_b}{\gamma_b}\right)} ; \quad \text{dacă} : |\omega - \omega_b| \ll \gamma_a \quad (20.9)$$

unde $L(x) = \frac{1}{1 + x^2}$ reprezintă factorul de formă lorentzian, $\eta = \alpha_{ef}/\gamma_0$ este excesul amplificării efective iniţiale raportat la pierderile liniare, iar parametrul $\beta = \frac{K_{b0}g_b}{K_{a0}g_a}$ caracterizează variaţia amplificării efective la $P = 0$ $\left(\text{cu } \beta > 1 ; \frac{d\alpha_{ef}}{dP} < 0 \text{ şi } \beta < 1 ; \frac{d\alpha_{ef}}{dP} > 0\right)$.

„Picul'' puterii are un contur lorentzian, iar semilărgimea lui este dată de relaţia

$$\Delta\omega_P = 2\gamma_b\left[\frac{2(1 - \beta)}{2 - \beta}\right]^{1/2}. \quad (20.10)$$

Amplitudinea relativă (contrastul) definită cu ajutorul relaţiei

$$H = \frac{1}{P_0}(P_{max} - P_0) \quad (20.11$$

mai poate fi scrisă şi sub forma

$$H = \frac{\beta}{2(1 - \beta)}.$$

Analizînd relațiile (20.9), (20.10) și (20.11) se observă că în cazul unui contrast foarte mic, ,,picul'' puterii coincide cu cel al ,,Lamb dip''-ului. Creșterea coeficientului de absorbție K_{b0} și deci a parametrului β conduce la o creștere a contrastului astfel că forma maximului puterii diferă mult de cea a conturului lorentzian care caracterizează ,,Lamb dip''-ul.

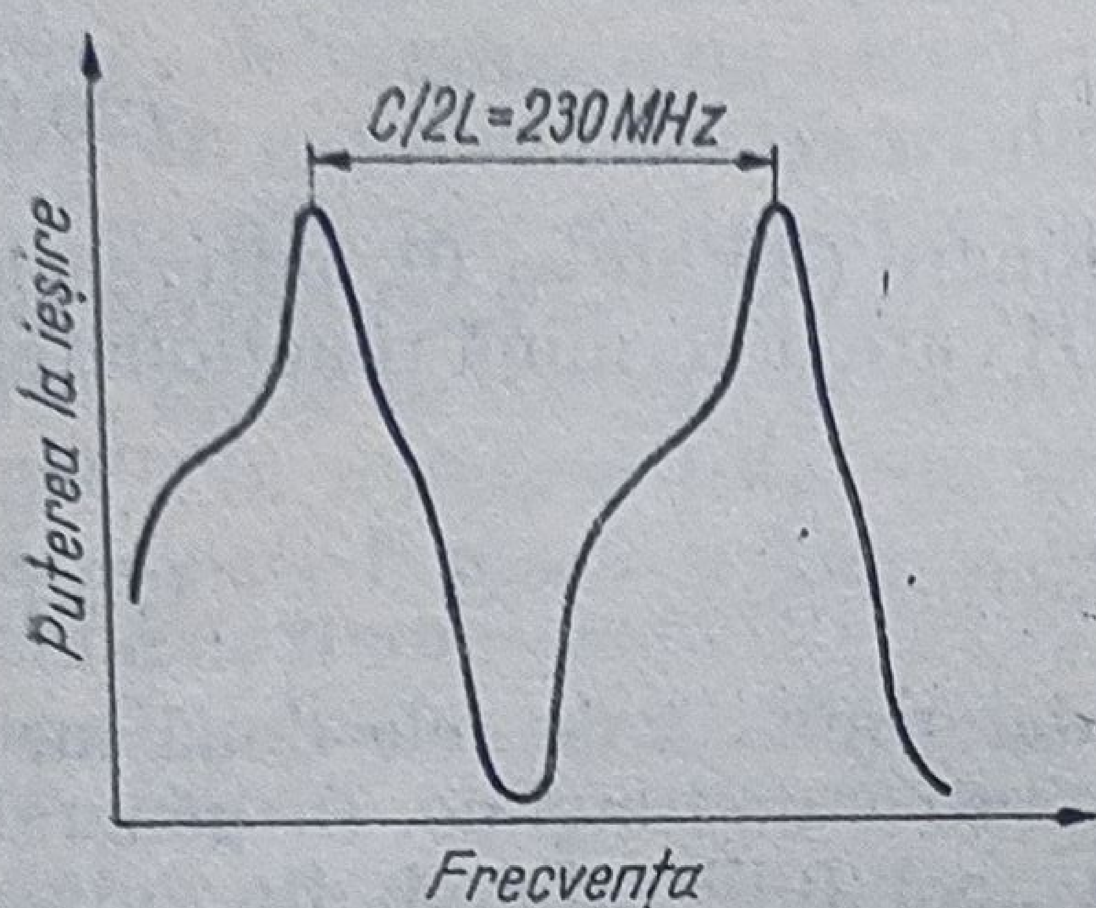


Fig. 20.6

În figura 20.6 este prezentat maximul puterii măsurată la ieșirea dintr-o celulă cu Ne plasată în interiorul cavității laserului cu He-Ne cu λ = 6328 Å.

Absorbanții neliniari care permit punerea în evidență a fenomenului ,,Lamb-dip'' inversat sînt prezentați în tabelul 20.1 și se împart în două mari categorii : atomi și molecule care compun mediul activ, dar care în anumite condiții prezintă o absorbție puternică ; molecule ale căror frecvențe de absorbție coincid accidental cu linia laser.

Se observă că pentru a pune în evidență efectul ,,Lamb-dip'' inversat gazele introduse în interiorul cavității laser trebuie să aibă un parametru de saturație a absorbției de același ordin de mărime sau mai mare decît cel al absorbției, iar în cazul moleculelor, timpul de relaxare corespunzător vibrației să fie cît mai mic.

Tabelul 20.1

Laser	λ(μm)	Absorbant	Bibliografie
He—Ne	0,6328	^{20}Ne (în descărcare)	[161, 147]
		$^{127}I_2$	[161]
		$^{129}I_2$	
		$^{79}Br_2$	[161]
He — ^{22}Ne	0,6328	^{22}Ne (în descărcare)	[161]
		$^{81}Br_2$	[161]
He—Ne	1,52	^{20}Ne (în descărcare)	[161, 147]
	3,39	$^{12}CH_4$ (în cîmp magnetic)	[161]
		$^{12}CH_4$ (în cîmp electric)	[161]
		$^{12}CH_4$ (în fascicul molecular)	[161]
He—Xe	3,507	H_2CO	[161]
CO_2	10,6	CO_4	[161]

Din cauza acestor dificultăți, este mai convenabil să se plaseze celula de probă în exteriorul cavității. În acest caz efectul ,,Lamb-dip'' este obținut cu ajutorul undelor staționare și se poate elimina astfel orice influență a absorbantului asupra amplitudinii și frecvenței laserului. Cu ajutorul acestei tehnici care permite și schimbarea formei spațiale a fasciculului, efectul ,,Lamb-dip'' a putut fi pus în evidență într-un număr mult mai mare de sisteme atomice și moleculare prezentate în tabelul 20.2.

Montajul cel mai des utilizat în experiențele cu unde staționare folosește modulația în amplitudine a radiației de pompaj, care produce saturarea absorbției, iar unda de probare care se propagă în sens contrar va fi modulată atunci cînd frecvența ei corespunde frecvenței ,,golului'' indus

în conturul Doppler, de radiația de pompaj (fig. 20.7). Partea modulată a coeficientului de absorbție al undei de probare este descrisă de termenul al doilea din relația (17.86).

Pentru a nu perturba funcționarea laserului, direcția undei de probare face un unghi mic θ cu direcția undei intense de pompaj rezultînd astfel o lărgire suplimentară

$$\Delta\omega_\theta = (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)\mathbf{v} = 2\,k\,v \sin\frac{\theta}{2} \simeq \theta\frac{u}{\lambda} \qquad (20.12)$$

a cărei valoare este mică.

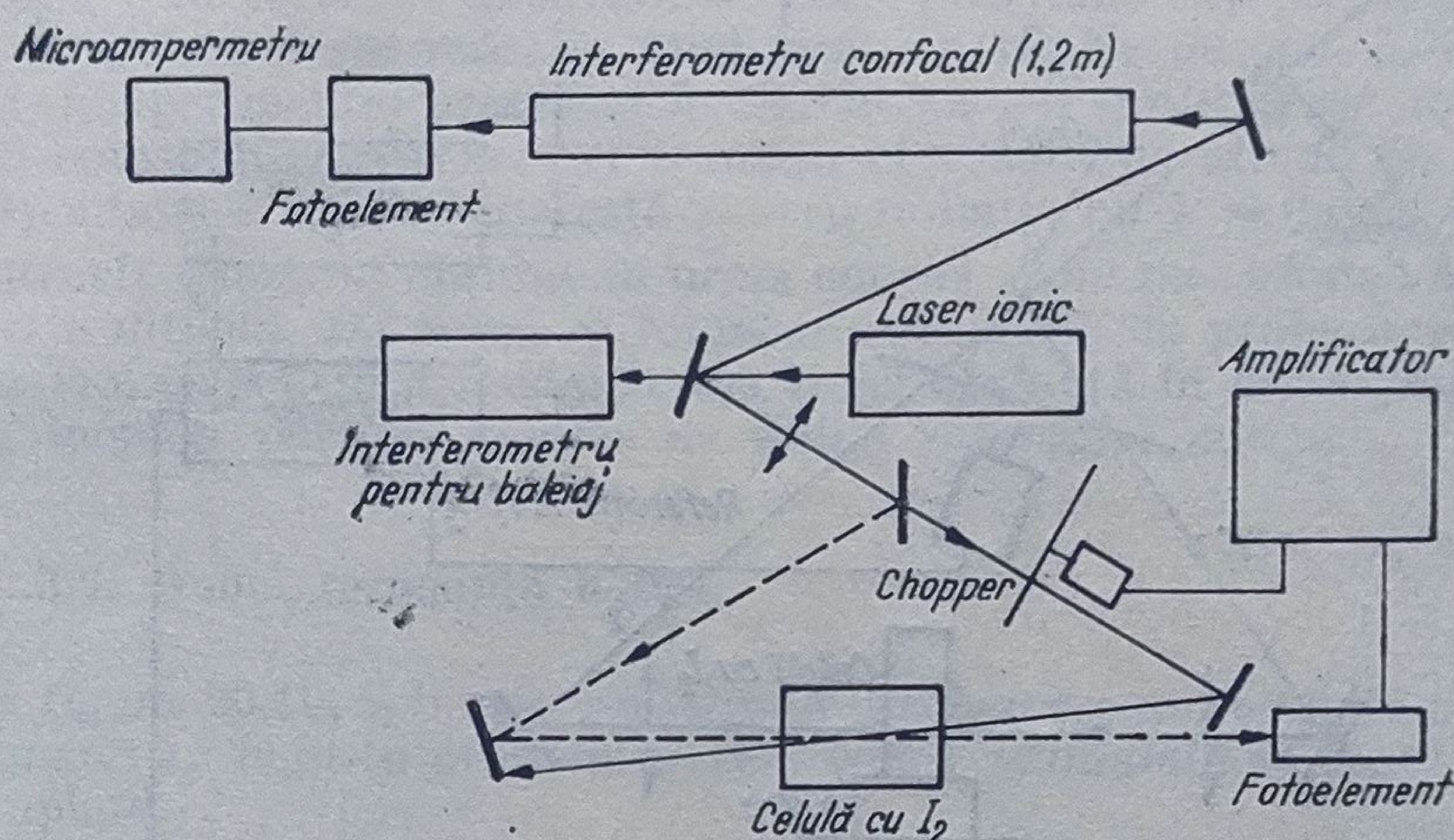


Fig. 20.7

Tabelul 20.2

Laser	λ(μm)	Absorbant	Bibliografie
Ar^+	0,5017	$^{127}I_2$	[161]
	0,5145	$^{127}I_2$, $^{129}I_2$	[161]
	0,5208	$^{127}I_2$, $^{129}I_2$	[161]
Kr^+	0,5682	$^{127}I_2$, $^{129}I_2$	[161]
He—^{20}Ne	0,6328	^{20}Ne (în descărcare)	[161, 147]
	0,6563	H (în descărcare)	[161]
		D (în descărcare)	[161]
	3,39	CH_4	[161]
Laser cu colorant	0,5890	Na	[161]

Amplitudinea „golului" care apare în linia de absorbție

$$H = \frac{\Delta K}{K_0} = 1 - \frac{1}{\sqrt{1+G}} \qquad (20.13)$$

poate fi mărită la rezonanță dacă se folosesc celule cu absorbanți cu densități mari pentru care $K_0 l \gg 1$ (l fiind lungimea celulei).

O altă posibilitate de a pune în evidență rezonanțele înguste ale atomilor excitați de undele staționare este legată de înregistrarea spectrului de fluorescență emis de aceștia. Această metodă este foarte sensibilă și

permite studiul unor tranziții pentru care absorbția este foarte slabă, $K_0 l \ll 10^{-2}$.

Primele experiențe au fost realizate cu molecule de CO_2 [161] la presiune scăzută, $10^{-3}-10^{-4}$ torr și temperatură de 300 K. Maximele înguste ale spectrului de fluorescență corespund unei tranziții cu $\lambda = 4{,}3$ μm de pe unul din nivelele de rotație-vibrație ale moleculei de CO_2 pentru care absorbția a fost saturată cu o radiație emisă de un laser cu CO_2.

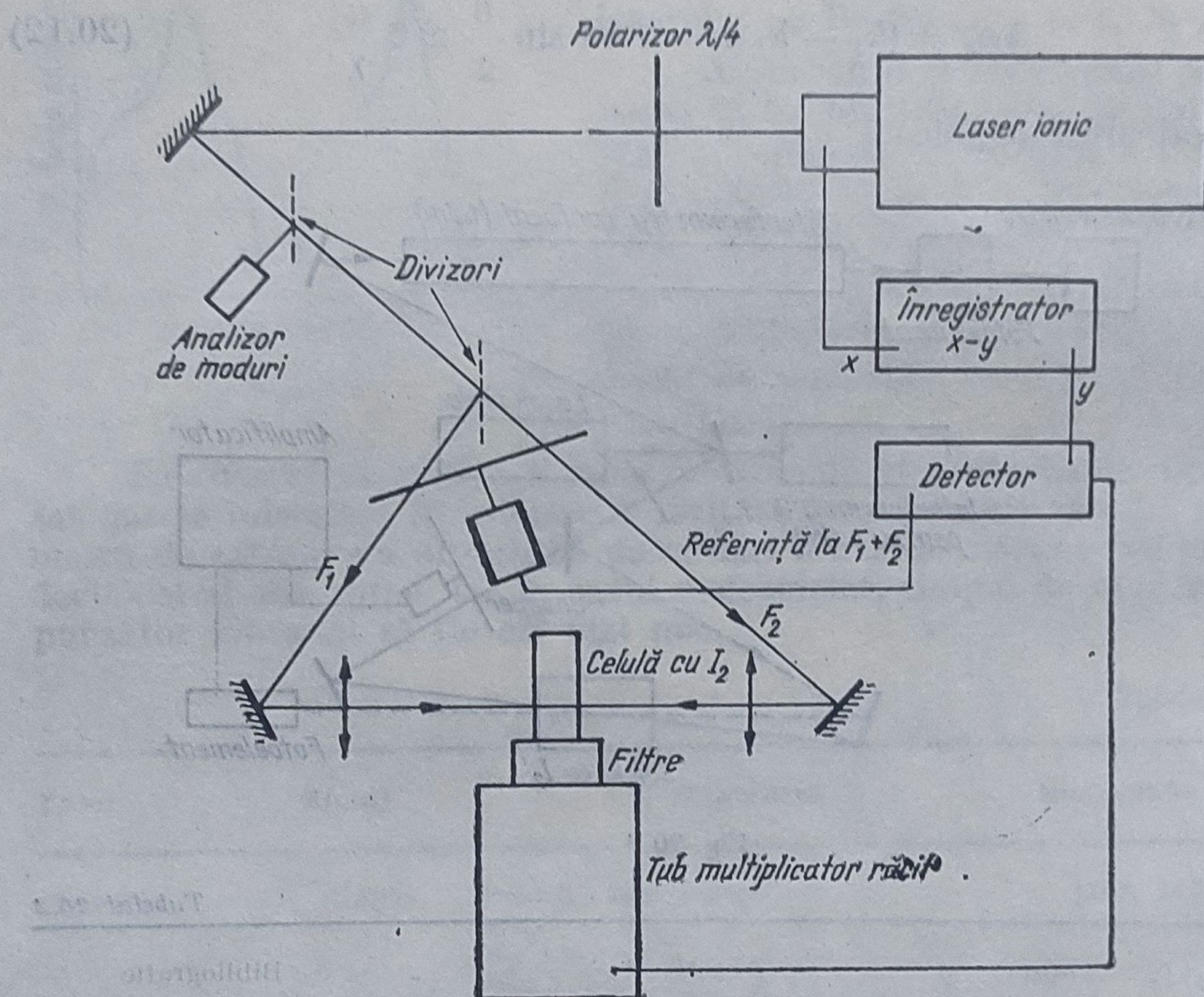


Fig. 20.8

Sensibilitatea poate fi mult mărită dacă saturarea se face cu ajutorul a două radiații de pompaj cu frecvențele ν_1 și ν_2 care se propagă în sens contrar ca în fig. 20.8, de exemplu.

În acest caz „dip”-ul apare în semnalul de fluorescență care este modulat cu o frecvență egală cu suma sau diferența frecvențelor ν_1 și ν_2. Prin această metodă se elimină fondul continuu al spectrului de fluorescență și alte semnale parazite. Cu ajutorul fluorescenței mai poate fi măsurat și coeficientul de absorbție al unei tranziții cuplate între un nivel excitat rezultat în urma unei tranziții saturate și un altul aflat în spectrul continuu [179].

Rezonanțe înguste mai pot fi obținute prin plasarea celulei cu absorbant în cîmpul a două unde cu frecvențe diferite. Metoda se bazează pe saturarea produsă de o radiație de pompaj cu frecvența ω_1 și probarea „golului” rezultat cu o altă radiație cu frecvența ω_2. Dacă frecvențele celor două unde sînt acordate simetric față de o altă frecvență ω_0 rezultă un fenomen de rezonanță îngustă asemănător cu efectul „Lamb-dip”.

20.3. Experiențe cu rezonanțe în sisteme cu trei nivele

Studiul sistemelor cu trei nivele, care sînt lărgite prin efect Doppler, evidențiază rezonanțe care pot fi obținute prin metodele enumerate în continuare.

20.3.1. Rezonanțe înguste obținute prin emisie spontană

Tranzițiile implicate în producerea de rezonanțe înguste sînt prezentate în fig. 20.9,b,c și rezultă în urma emisiei spontane de pe nivelul intermediar 0 în prezența unei radiații laser puternice care cuplează tranziția 1—0. Folosindu-se radiația unui laser cu He-Ne cu $\lambda = 3{,}39$ μm și un montaj experimental prezentat în fig. 20.9,a s-a obținut saturarea amplificării corespunzătoare acestei tranziții efectuată de atomii de ^{20}Ne, iar emisia spontană a fost înregistrată pentru radiația cu $\lambda = 0{,}6328$ μm.

Întrucît semnalul obținut în urma emisiei spontane este slab, detecția lui este dificilă. De aceea se folosește o radiație de probare, care stimulează emisia pentru a studia forma liniei obținută în urma tranzițiilor cuplate, metoda purtînd numele de dublă rezonanță optică.

20.3.2. Dublă rezonanță optică

În figura 20.10, a, b este prezentată o schemă care permite observarea rezonanțelor înguste prin emisie spontană și stimulată în cazul tranzițiilor cuplate.

Între cele două metode de obținere a rezonanțelor înguste, prin emisie stimulată și prin dublă rezonanță optică, există două mari deosebiri.

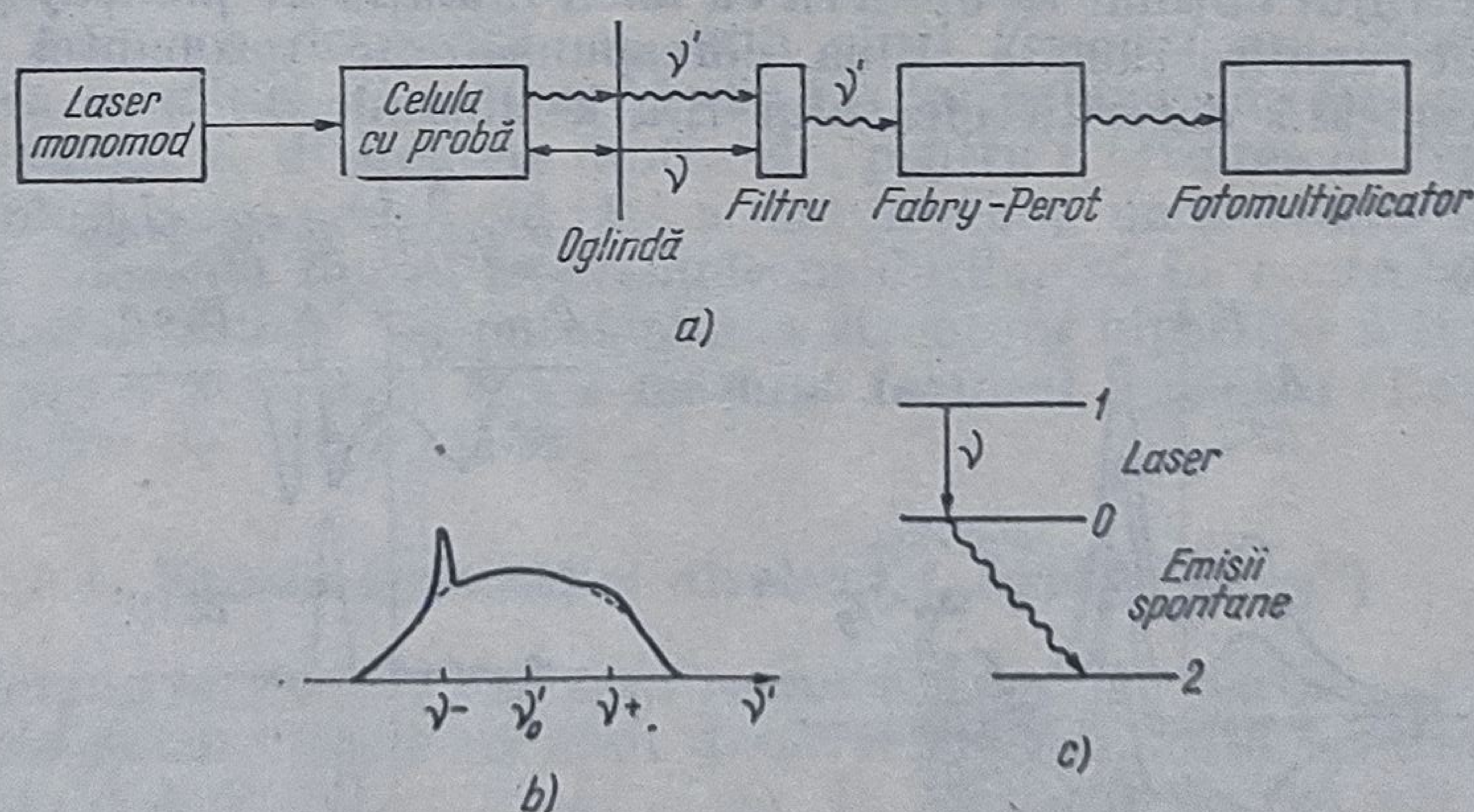


Fig. 20.9

În versiunea emisiei spontane, puterea de rezoluție este determinată de interferometrul Fabry-Pérot și de unghiul sub care radiațiile obținute prin emisie spontană sînt detectate, conducînd pentru rezoluții mari la scăderea sensibilității. Versiunea emisiei stimulate elimină aceste neajunsuri pentru că fasciculul radiației de probare poate fi dirijat paralel

cu cel al radiației de pompaj relativ ușor, obținîndu-se în final o mare putere de rezoluție pentru un laser monomod.

Emisia spontană poate fi observată numai în cazul tranzițiilor atomice permise și mai rar în cazul tranzițiilor între nivelele de vibrație ale moleculelor, în timp ce prin emisia stimulată se pot studia atît tranzițiile

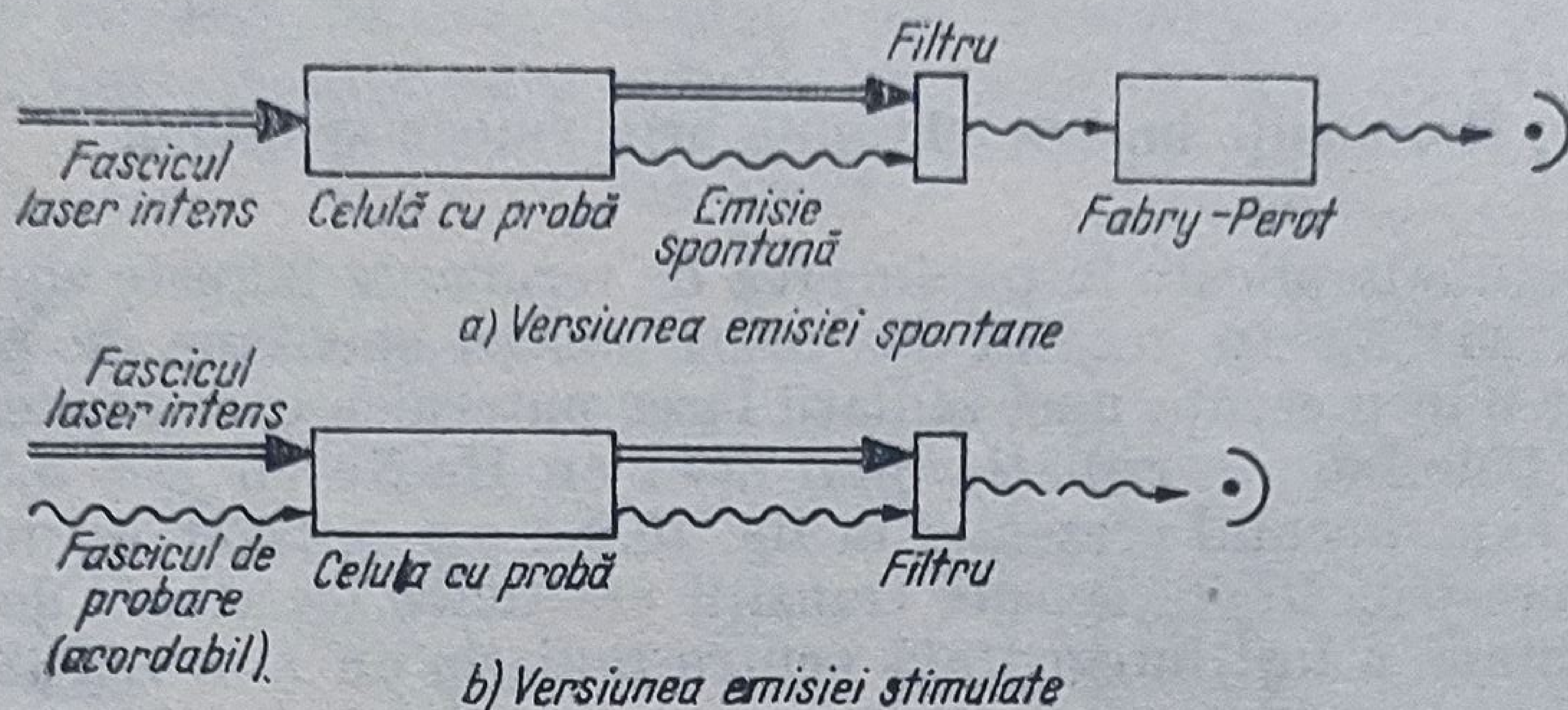


Fig. 20.10

permise cît și cele interzise ale atomilor și moleculelor în domeniul vizibil și ultraviolet al spectrului.

Primele experiențe de acest gen au pus în evidență tranzițiile efectuate de atomii de Ne, tranziții induse de o radiație de pompaj cu $\lambda_{10} = 0{,}63$ μm provenită de la un laser cu He-Ne [182, 183].

În figura 20.11 este prezentată forma liniei pentru o radiație de probare cu λ_{02} (fig. 20.11, a, teoretic; 20.11, b, experimental) funcție de dezacordul frecvenței față de centrul ω_{10}, la diferite valori ale diferenței de populație dintre nivelele 0 și 2.

Atît calculele teoretice [184], cît și valorile experimentale [182, 183] au pus în evidență caracterul anizotrop al liniei Ne cu $\lambda_{02} = 1{,}15$ μm. Din analiza spectrului obținut se observă că dacă radiația de pompaj și cea de probare sînt unidirecționale, linia corespunzătoare rezonanței înguste poate fi despicată datorită efectului Stark dinamic.

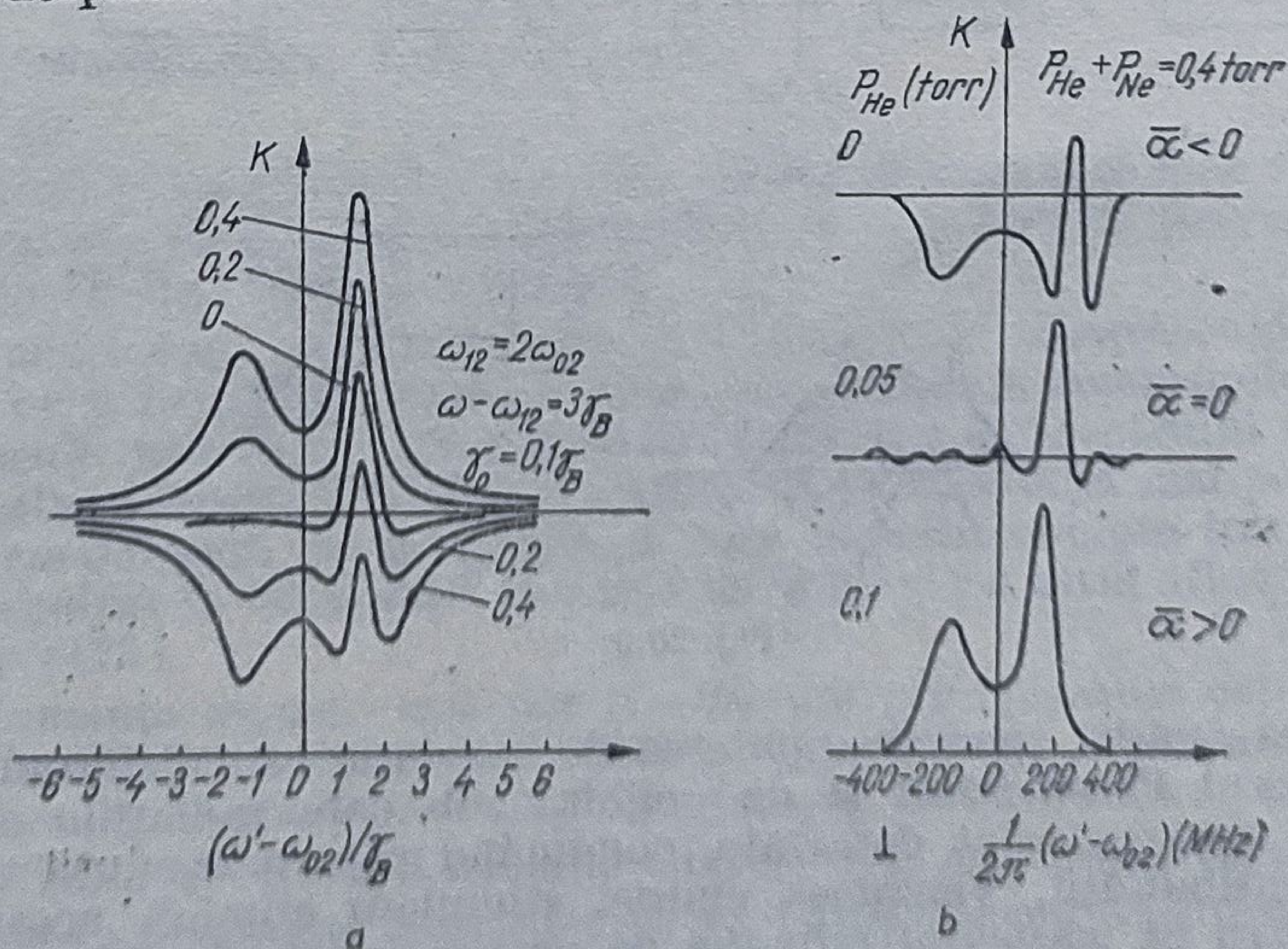


Fig. 20.11

Dacă radiaţia de pompaj şi cea de probare determină tranziţii cuplate între diferite nivele de vibraţie ale moleculelor, rezultă tot un fenomen de dublă rezonanţă în infraroşu. Astfel cu ajutorul unui laser cu CO_2 a fost investigată molecula de CH_3F [185].

Fenomenul de dublă rezonanţă poate să apară şi în domeniul infraroşu — microunde, dacă una dintre radiaţii determină tranziţii între nivelele vibraţionale, iar cealaltă între nivele de rotaţie cuplate cu primele.

Această metodă a fost folosită la obţinerea spectrului moleculei de H_2CO [186].

20.3.3. Metoda intersecţiei modurilor („mode crossing")

Principiul acestei metode este asemănător cu cel al dublei rezonanţe optice, deosebirea constînd în aceea că nivelele implicate în tranziţiile cuplate sînt atît de apropiate între ele încît profilurile Doppler ale celor două nivele excitate se suprapun. În acest caz pentru pompaj şi pentru probare pot fi folosite undele a două moduri adiacente ale aceluiaşi laser (fig. 20.12). Fenomenul de rezonanţă apare dacă frecvenţa corespunzătoare tranziţiei între cele două nivele ω_{10} este egală cu diferenţa frecvenţelor celor două moduri

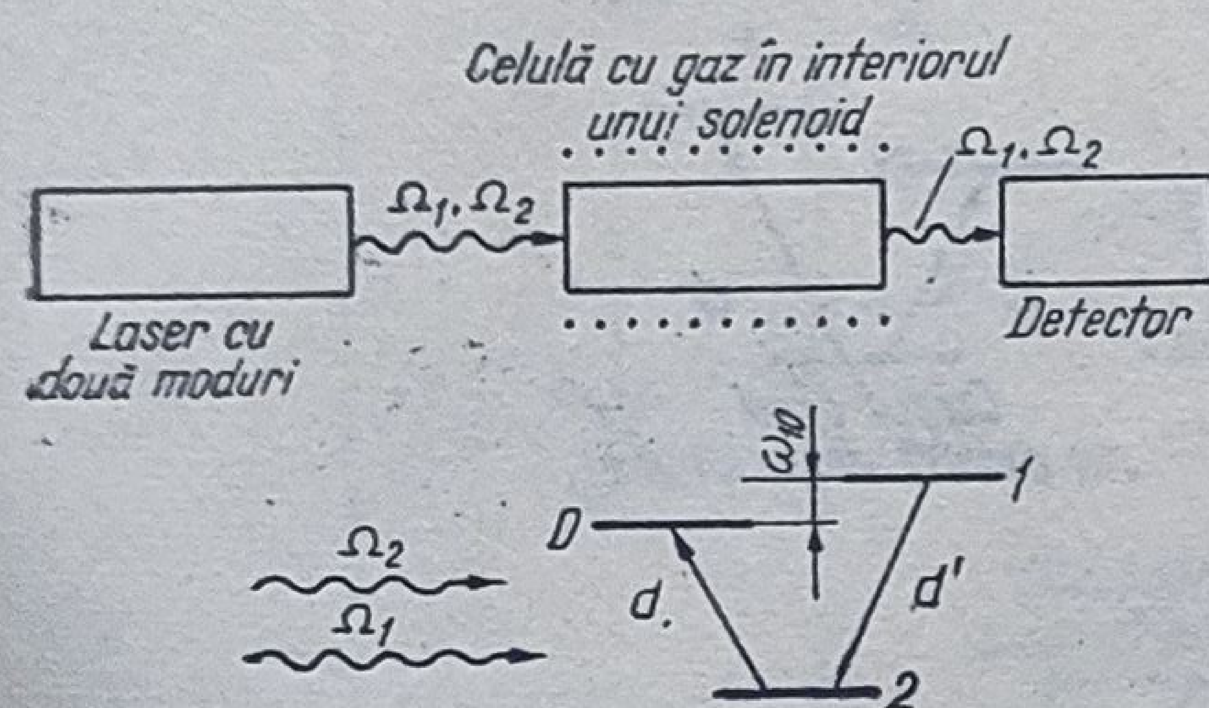


Fig. 20.12

$$\omega_{10} = \Omega_1 - \Omega_2. \qquad (20.14)$$

În acest caz sistemul cuantic interacţioneaza cu ambele unde numai dacă este realizată condiţia : $\Omega_1 - \omega_{01} = \Omega_2 - \omega_{02}$ sau dacă schimbările frecvenţelor datorită efectului Doppler sînt egale.

Fenomenul de rezonanţă se obţine variind frecvenţa unui mod sau variind mărimea despicării ω_{10} prin efect Zeeman sau Stark. Întrucît realizarea condiţiei de rezonanţă (20.14) nu depinde de frecvenţele absolute, ci numai de diferenţele dintre ele, pentru realizarea ei experimentală se pot folosi laseri multimod fără a mai produce unde staţionare cu condiţia ca diferenţa dintre frecvenţele modurilor să fie controlată. Cu ajutorul acestei metode s-a putut studia structura hiperfină a liniei cu $\lambda = 3{,}37\ \mu m$ a xenonului şi s-a măsurat factorul g pentru cîteva tranziţii ale atomilor de oxigen [188].

20.3.4. Metoda intersecţiei nivelelor („level crossing")

Metoda *intersecţiei* nivelelor reprezintă un caz particular al metodei *intersecţiei* modurilor, cînd unul din nivelele implicate în tranziţiile cuplate este degenerat, adică $\omega_{01} = \omega_{02}$. În acest caz pentru a fi îndeplinită condiţia de rezonanţă (20.14) este necesară o singură undă. Fenomenul de rezonanţă se poate manifesta, prin schimbarea coeficientului de absorbţie al undei cînd degenerarea este ridicată cu ajutorul unui cîmp electric sau magnetic care pot să aibă intensităţi mari sau chiar nule (efect Hanle). Montajul experimental este prezentat în fig. 20.13.

Cu ajutorul acestei metode s-a putut studia despicarea Zeeman în oxigen, xenon [188], metan [189] şi alte gaze.

20.3.5. Metoda dublei rezonanțe optice indusă de ciocniri

„Golurile'' și „picurile'' care apar în distribuția atomilor după viteze (cap. 17) pot fi produse în nivelele implicate în tranzițiile cuplate și prin ciocniri, adică există posibilitatea de a se crea rezonanțe înguste în aceste tranziții lărgite prin efect Doppler.

Aplicîndu-se metoda dublei rezonanțe optice moleculei de CH_3F (cap. 20.3.2) s-au observat rezonanțe corespunzătoare tranzițiilor cuplate

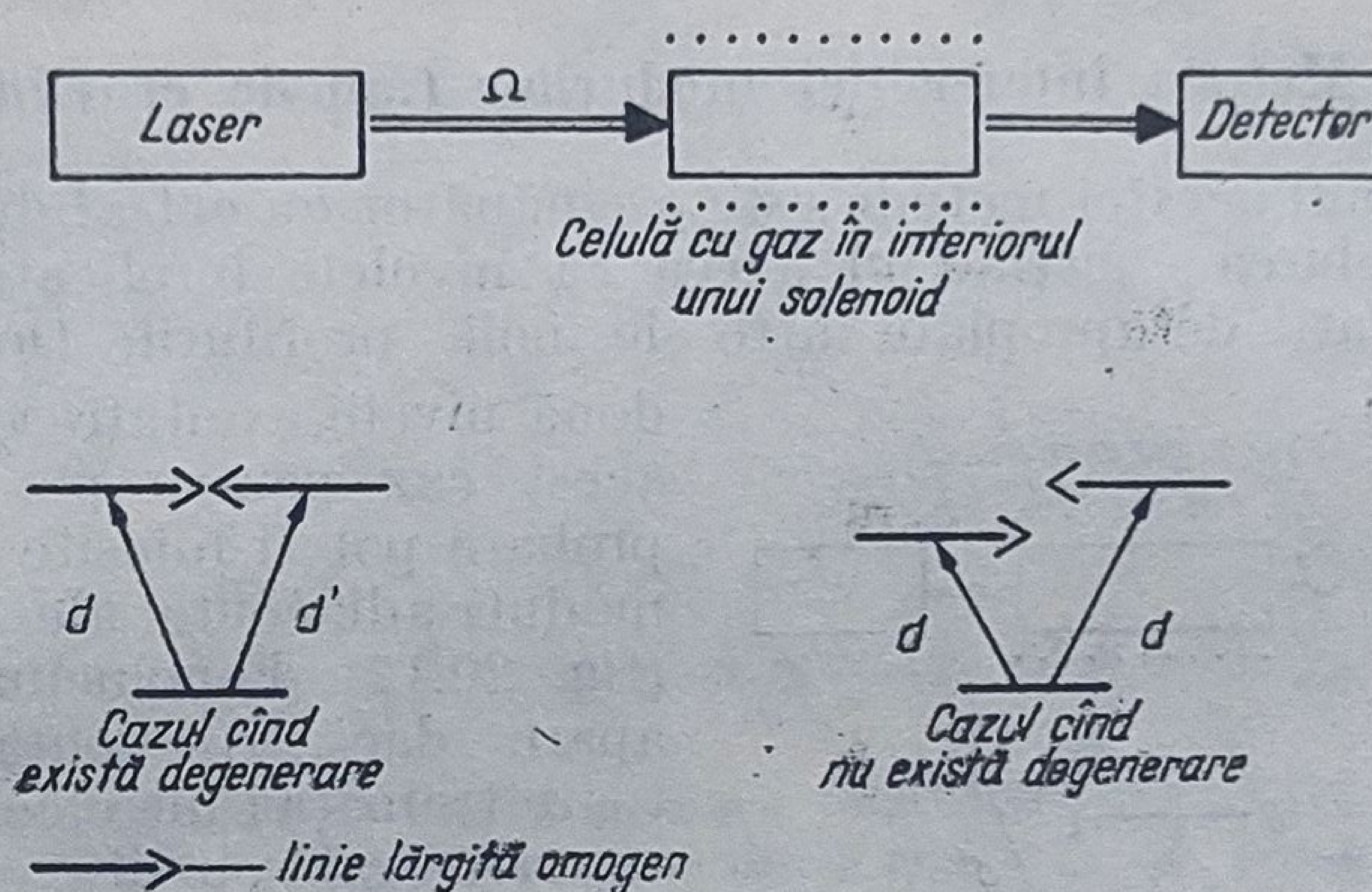


Fig. 20.13

numai datorită proceselor de ciocnire. De fapt, dubla rezonanță indusă de ciocniri poate fi observată în cazul oricărei perechi de tranziții cuplate, ceea ce dovedește că ciocnirile care cuplează tranzițiile conservă vitezele moleculelor.

20.3.6. Rezonanțe obținute prin efect Raman stimulat

Pentru a evidenția rezonanțele prin efect Raman stimulat trebuie ca timpul de viață al nivelului intermediar să fie mult mai scurt decît timpii de viață corespunzători nivelului fundamental respectiv final.

Spectrul obținut în urma tranziției $0 \to 2$ în cazul tranzițiilor cuplate este format din linii înguste care prezintă și proprietatea de anizotropie în comparație cu cel corespunzător aceleiași tranziții dar care implică un singur foton.

Primele experiențe care au pus în evidență rezonanțe prin efect Raman stimulat au fost efectuate în neon, folosindu-se pentru aceasta tranzițiile $2s_2 - 2p_4$ ($\lambda = 1{,}15$ μm) și $2s_2 - 2p_1$ ($\lambda = 1{,}5$ μm). Montajul experimental este prezentat în fig. 20.14.

Radiația de pompaj a unui laser cu He-Ne ($\lambda = 1{,}52$ μm) produce excitarea atomilor de Ne dintr-un tub de descărcare, iar cu ajutorul radiației de probare ($\lambda = 1{,}15$ μm) provenită tot de la un laser cu He-Ne se înregistrează forma liniei tranziției $2s_2 - 2p_4$.

Spectrul obținut (fig. 20.15) este format din linii care sînt mai înguste în cazul în care cele două radiații (de pompaj și de probare) se pro-

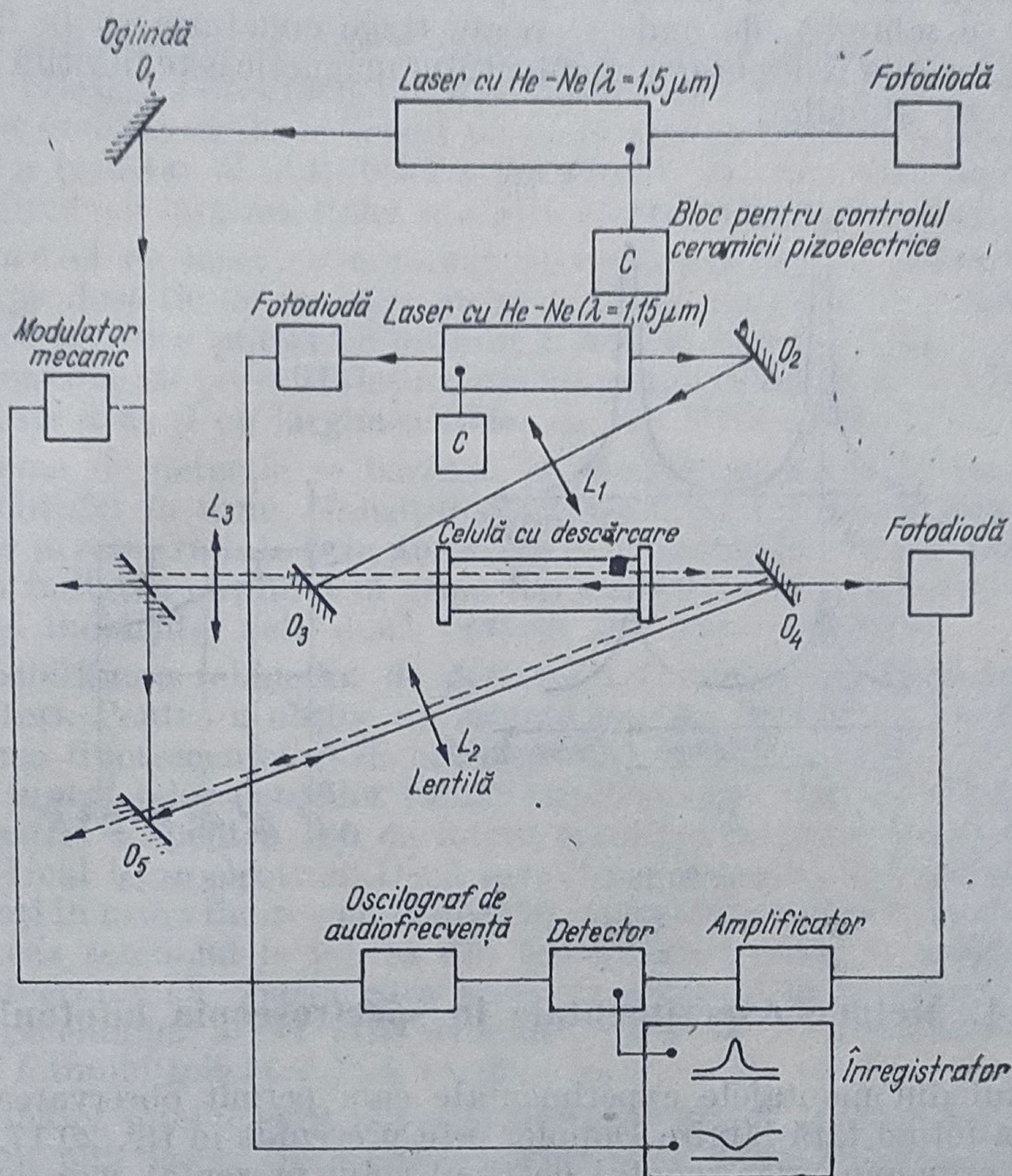


Fig. 20.14

pagă în același sens fig. (20.15, b) decît în cazul în care ele se propagă în sens contrar (fig. 20.15, a).

Ținînd seama de valorile timpilor de viață ai celor trei nivele ($\gamma_{2P_1} = 6,95 \cdot 10^7 s^{-1}$, $\gamma_{2P_4} = 5,24 \cdot 10^7 s^{-1}$ și $\gamma_{2S_2} = 1,6 \cdot 10^8 s^{-1}$) care satisfac condițiile obținerii efectului Raman stimulat se pot calcula lărgimile liniilor corespunzătoare împrăștierii radiațiilor înainte și respectiv înapoi $2\gamma_- = 30,8$ MHz și $2\gamma_+ = 82,6$ MHz care sînt în bună concordanță cu cele determinate experimental: $2\gamma_- = 31 \pm 2$ MHz și $2\gamma_+ = 86 \pm 3$ MHz.

Structura liniilor observate experimental depinde și de polarizarea cîmpurilor celor două radiații (de pompaj și de probare). În figură este prezentată forma liniei $2s_2 - 2p_4$ pentru o polarizare circulară a undei cu $\lambda = 1,52$ μm (dreaptă — fig. 20.15, a și stîngă fig. 20.15,b).

În figura 20.16 este prezentată dependența gradului de polarizare h al liniei $2s_2-2p_4$ funcție de unghiul dintre planele de polarizare. Gradul de anizotropie a polarizării este descris de funcția

$$\frac{K}{K_0} = 1 - 0,25 \sin^2\theta \qquad (20.15)$$

unde K_0 este cîștigul obținut pentru polarizări liniare identice. Gradul maxim al polarizării liniei măsurată experimental este 25%.

Pentru valori ale presiunii cuprinse între 0,3—0,5 torr polarizarea liniei nu se schimbă, de unde se poate trage concluzia că în urma excitării la rezonanță reorientarea momentului magnetic este însoțită de schimbarea vitezei atomilor.

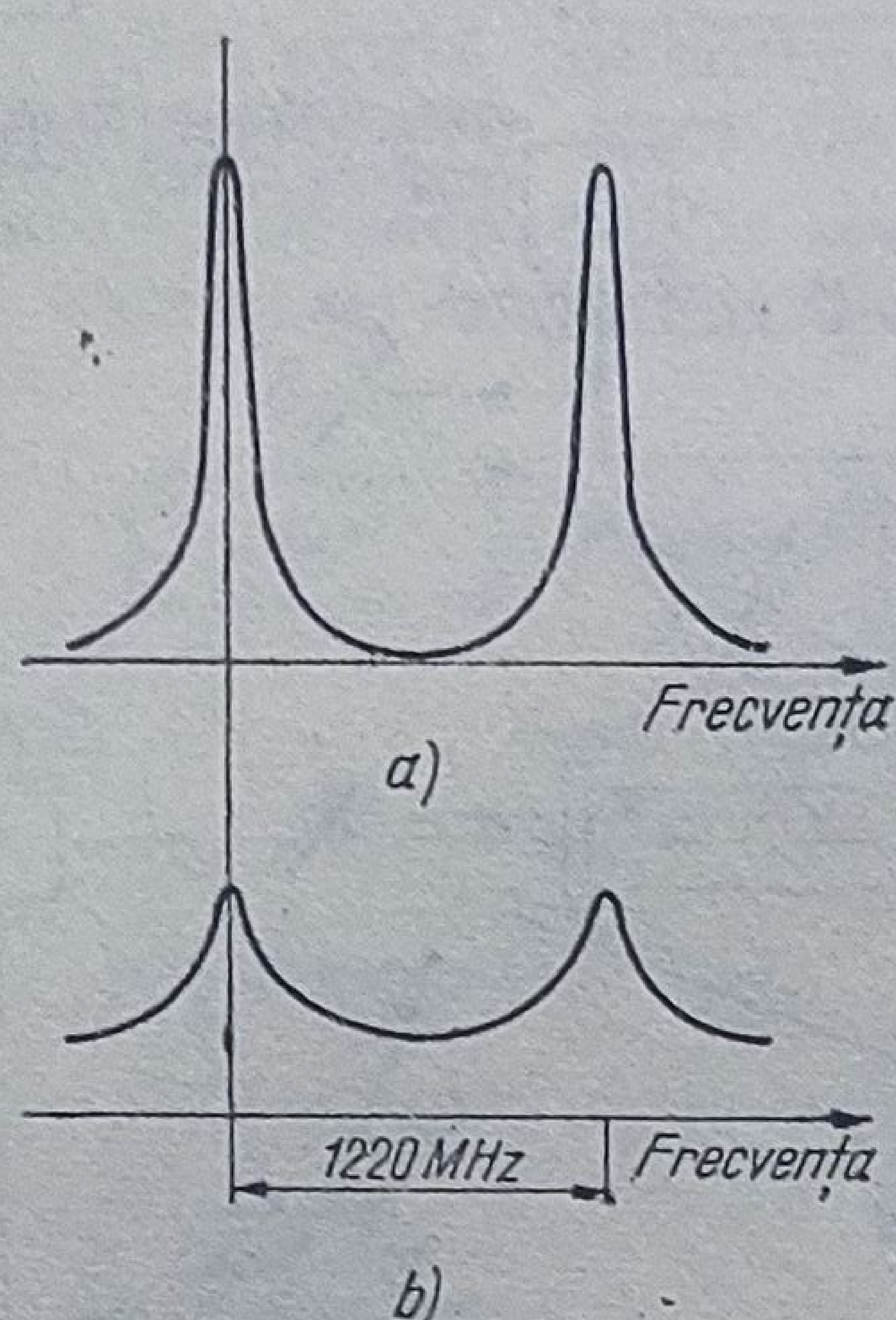


Fig. 20.15

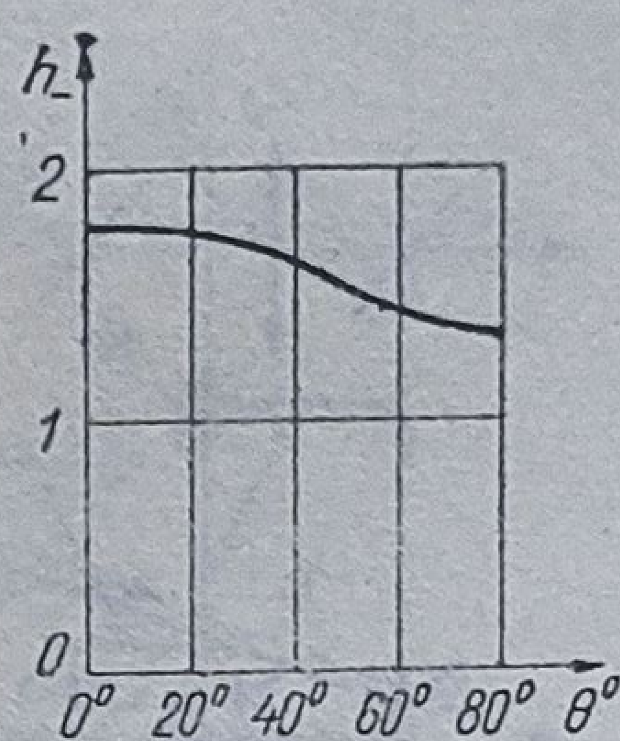


Fig. 20.16

20.4. Metode experimentale în spectroscopia bifotonică

Unul din montajele experimentale care permit observarea absorbției a doi fotoni fără lărgire Doppler este prezentat în fig. 20.17.

În principiu orice montaj de tipul celui prezentat mai înainte trebuie să conțină un sistem de laseri care să producă radiațiile cu frecvențele dorite, un sistem de detecție care să permită observarea absorbției a doi fotoni și înregistrarea acesteia funcție de frecvență, și între cele două sisteme, montajul experimental propriu-zis care conține celula cu mediul neliniar în care are loc interacția, polarizori, oglinzi și lentile pentru focalizarea fasciculelor laser.

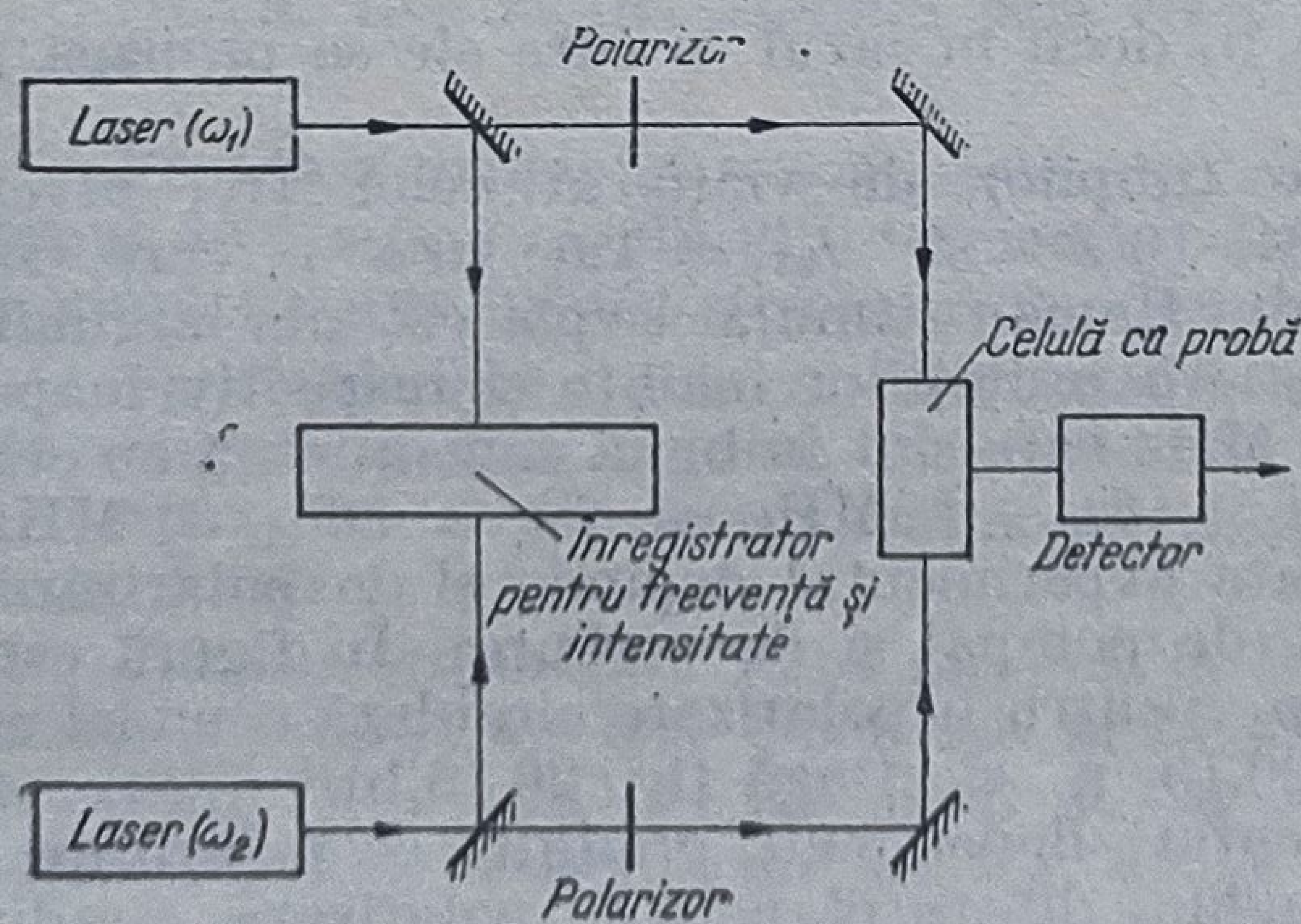


Fig. 20.17

Tranzițiile bifotonice fără lărgire Doppler au fost observate atît în vizibil cît și în infraroșu și ultraviolet cu ajutorul laserilor acordabili de bandă îngustă [173]. De asemenea, laserii folosiți trebuie să lucreze pe o singură frecvență stabilizată cu un ecart de 1 MHz, întrucît absorbția scade cu un factor invers proporțional cu ecartul de frecvență folosit.

Laserii folosiţi trebuie să aibă moduri transversale coborîte şi stabile, de preferinţă TEM_{000}, astfel încît radiaţia să fie concentrată eficient pe probă. Puterea lor trebuie să fie suficient de mare pentru a produce semnale detectabile ca rezultat al absorbţiei a doi fotoni, dar nici prea mare pentru ca să nu producă lărgirea liniei sau alte efecte neliniare nedorite.

Un astfel de laser cu colorant poate fi excitat cu pulsuri scurte (<16 ns) produse fie de un laser cu azot, fie de un laser cu rubin. Laserii cu azot pot produce puteri de ordinul 1 MW în impulsuri de 8 ns, obţinîndu-se maxime ale puterii la ieşirea din laserul cu colorant de 40 kW, pulsuri cu durata de 6 ns şi cu lărgimea liniei de 120 MHz [172, 173].

Schema de detecţie se bazează pe înregistrarea spectrului de fluorescenţă obţinut în urma tranziţiilor atomilor pe nivelul fundamental de pe diferite nivele excitate prin absorbţie multifotonică. Întrucît lungimea de undă a radiaţiei obţinută în urma fluorescenţei este mai mică decît cea a radiaţiei incidente, cele două radiaţii sînt gata separate.

Sensibilitatea tehnicilor de detecţie a fluorescenţei depinde de mai mulţi factori. Pentru a obţine un semnal maxim trebuie ca fotonii rezultaţi în urma fluorescenţei să fie colectaţi într-un unghi solid cît mai mare. În cazul suprafeţelor catozilor fotomultiplicatorilor uzuali eficienţa este de 10% astfel că pentru 100 de fotoni rezultaţi în urma fluorescenţei se obţine în final 1 fotoelectron. Dacă sursa laser lucrează în impulsuri, fotonii rezultaţi în urma fluorescenţei apar în intervalul a cîtorva microsecunde. În acest caz semnalul la ieşirea din fotodetector poate fi mediat de un sistem integrator cu poartă care primeşte semnale în intervale de timp limitate. Se elimină astfel atît semnalele parazite cît şi radiaţia de fond emisă de fotomultiplicator fără ca detectorul să fie răcit.

Semnalul minim care poate fi detectat astfel, este de un fotoelectron pe un puls laser. Dacă energia unui puls este de 100 μJ, atenuări ale fasciculului incident de ordinul 10^{-11} pot fi detectate cu ajutorul acestei tehnici.

Radiaţia parazită obţinută în urma fluorescenţei diferitelor materiale excitate de laser sau cea datorată absorbţiei liniare poate fi eliminată cu ajutorul unui filtru sau cu ajutorul unui monocromator.

Între cele două sisteme de excitare şi de detecţie se inserează celula cu probă, care are la capete două ferestre de sticlă optică de foarte bună calitate, pentru a nu produce împrăştierea luminii care să degradeze focalizarea fasciculului. În cazul în care detecţia se face prin înregistrarea fluorescenţei rezultate în urma tranziţiei din stările excitate obţinute prin absorbţia a doi fotoni, celula mai trebuie prevăzută şi cu o fereastră laterală. Dacă celula mai trebuie şi încălzită în timpul experienţei, trebuie care zistenţa bobinată să nu producă cîmpuri magnetice care să perturbe energia stărilor excitate.

După ce au fost polarizate, cele două fascicule laser cu frecvenţele ω_1 şi ω_2 sînt focalizate pe celula cu proba în acelaşi punct (fig. 20.17). Spotul obţinut în urma focalizării nu trebuie să fie foarte mic întrucît absorbţia a doi fotoni depinde pe lîngă pătratul puterii absorbite pe unitatea de arie şi de numărul de atomi sau molecule din regiunea focală. Mărimea lărgirii Doppler care apare este

$$\Delta\omega_D = (\omega_1 - \omega_2)[2kT/mc^2 \ln 2]^{1/2}. \tag{20.16}$$

În urma focalizării și alinierii fasciculelor laser, este posibil ca o parte din radiație să fie introdusă în cavitatea laser și să producă destabilizarea frecvenței oscilațiilor. Pentru eliminarea acestui efect nedorit se folosesc, de exemplu, fascicule ușor necoliniare care introduc o lărgire Doppler suplimentară chiar și în cazul în care cele două frecvențe sînt egale, de forma

$$\Delta\omega_0 = 2\omega_1[2kT/mc^2 \ln 2]^{1/2} \sin\theta \qquad (20.17)$$

unde θ este unghiul de deviație al fasciculelor laser față de direcția pentru erau erau coliniare.

20.5. Rezultate experimentale obținute în spectroscopia laser bifotonică

Primele experiențe care au pus în evidență absorbția a doi fotoni fără lărgire Doppler au fost efectuate cu atomi de sodiu [174, 175]. Cu ajutorul a două radiații cu $\lambda = 6022{,}3$ Å, provenite de la un laser cu coloranți s-a investigat tranziția $3\,S \to 5\,S$ ce este interzisă în cazul tranzițiilor de dipol care implică un singur foton (fig. 20.18, a). Detecția atomilor de Na în starea excitată $5\,S$ se poate face înregistrîndu-se spectrul de emisie rezultat în urma tranzițiilor pe nivelele $3\,P$ sau $4\,P$. Din cauza faptului că atomii de sodiu au spinul nuclear $I = 3/2$ se produce o despicare hiperfină a nivelelor stărilor $3\,S$ și $5\,S$ în două subnivele. Pentru tranzițiile care implică doi fotoni regulile de selecție sînt $\Delta F = 0$ și $\Delta M_F = 0$, astfel că spectrul de absorbție este determinat de suprapunerea a două tranziții : $F = 1 \to F' = 1$ și $F = 2 \to F' = 2$ (fig. 20.18, b). Înregistrarea spectrulni a fost făcută atît pentru lumină liniar polarizată, cît și pentru cea circular polarizată (fig. 20.18, c).

Măsurîndu-se mărimea despicării :

$$\Delta\nu = A_{3S} - A_{5S} = 811 \pm 5 \text{ MHz} \qquad (20.18)$$

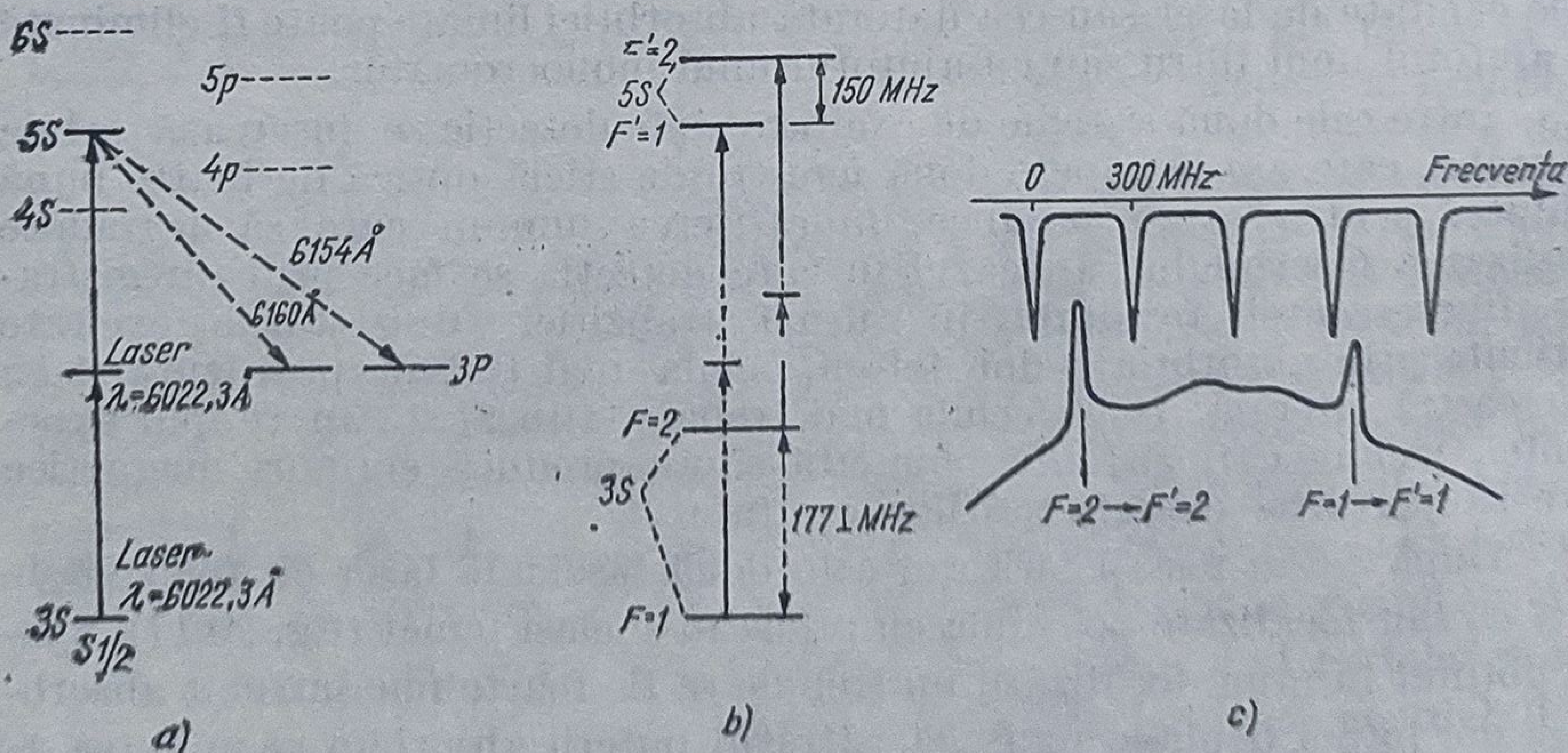


Fig. 20.18

și știind că $A_{3S} = 886$ MHz se poate obține constanta interacției hiperfine corespunzătoare stării $5S$, $A_{5S} = 75 \pm 5$ MHz.

Introducîndu-se celula cu vapori de sodiu într-un cîmp magnetic, a fost studiată despicarea Zeeman a liniilor corespunzătoare tranziției $3S \to 5S$ (fig. 20.19). Spectrul constă din patru linii egal depărtate cu cantitatea $\frac{1}{2\hbar}(A_{3S} - A_{5S})$. Din cauza regulilor de selecție $\Delta m_S = \Delta m_j = 0$, liniile spectrale tind să devină independente de intensitatea cîmpului magnetic pentru valori mari ale acestuia. S-a observat de asemenea că pentru orice valoare a cîmpului magnetic forma spectrului este independentă de direcția acestuia, precum și de polarizarea și direcția de propagare a fasciculului [172].

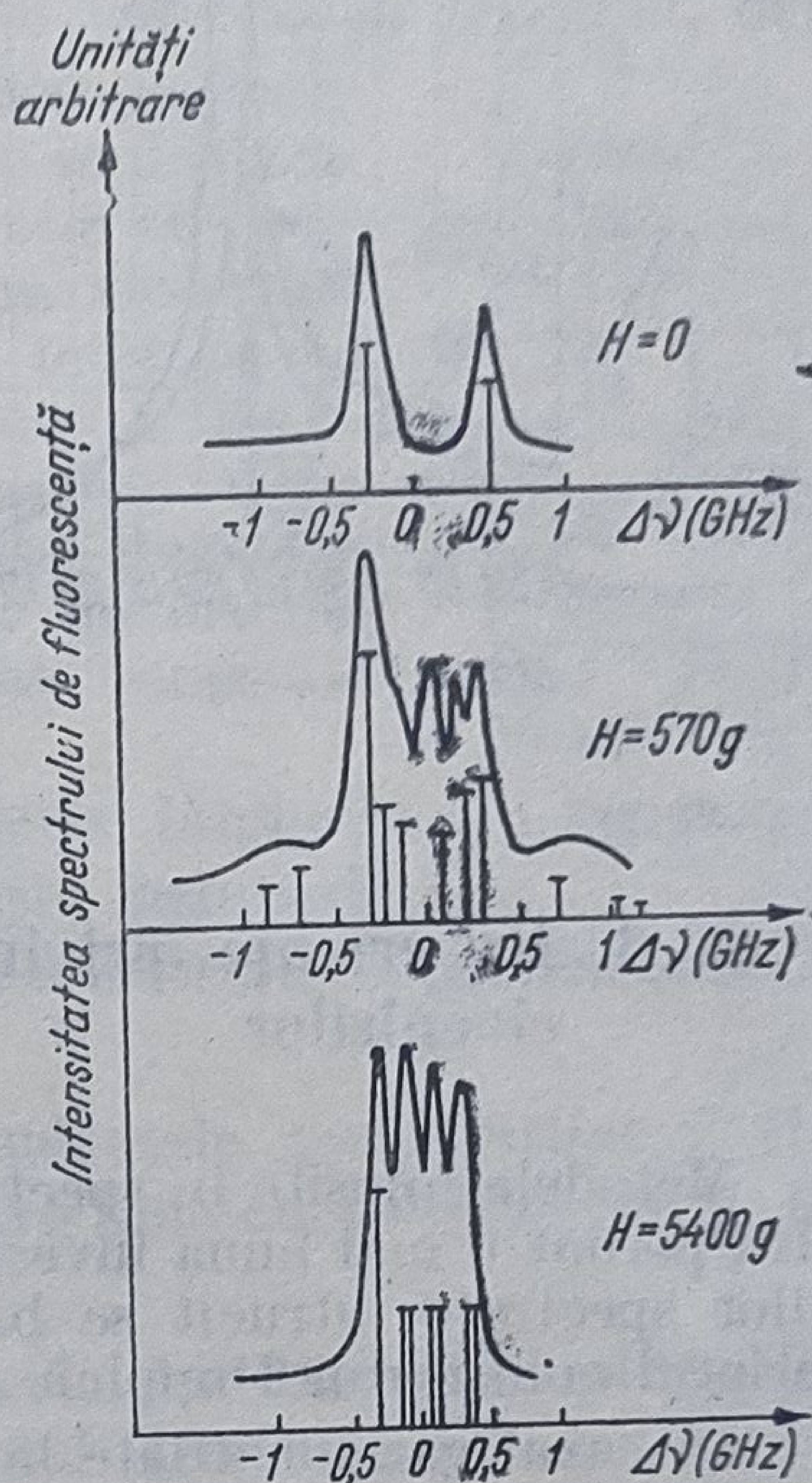
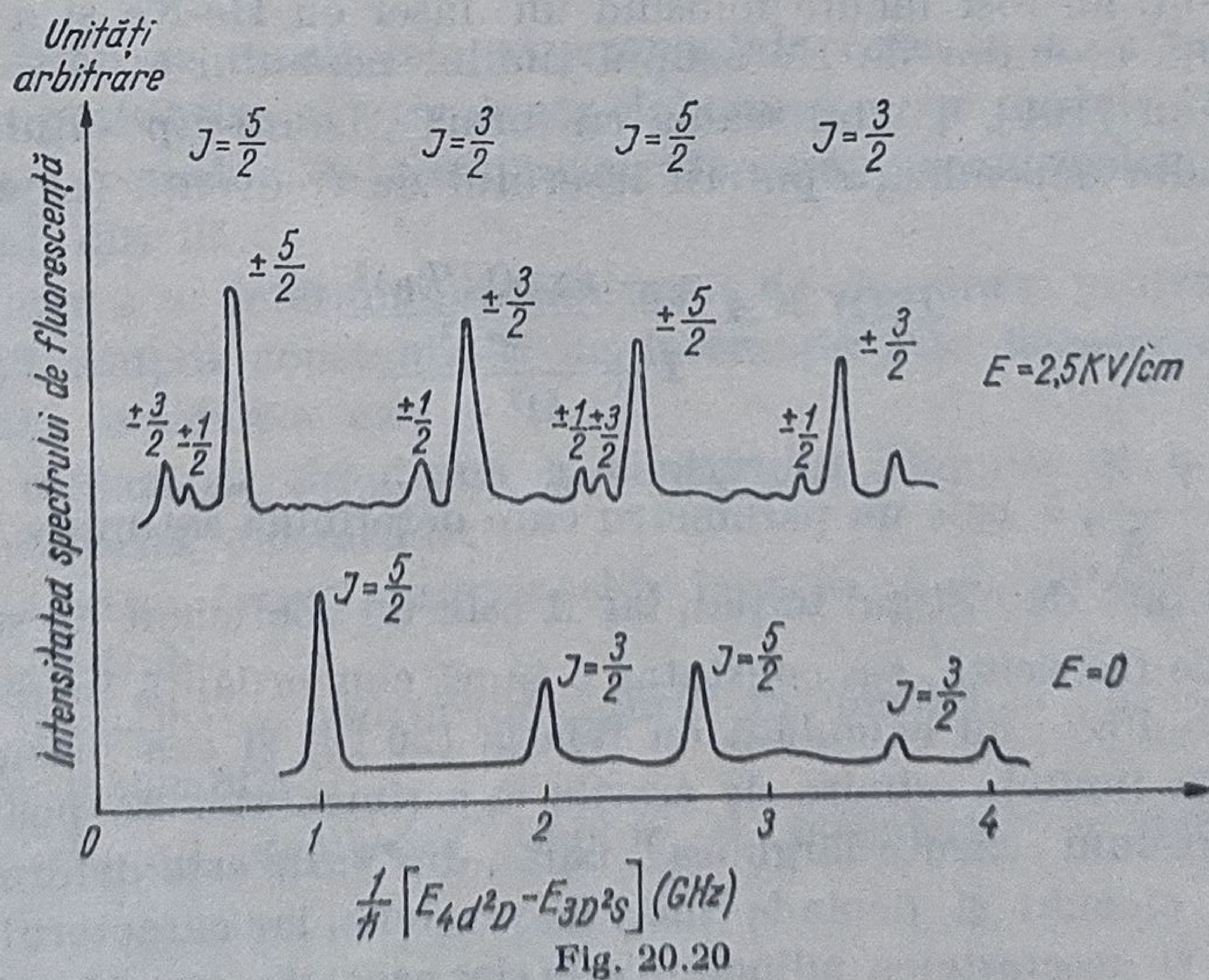


Fig. 20.19

Tranziția $3S \to 4D$ (în cîmp electric) a fost studiată folosind două fascicule care se propagă în sensuri contrare obținute cu ajutorul unui laser acordabil cu undă continuă.

Din studiul spectrului prezentat în fig. 20.20 s-a putut determina atît mărimea despicării hiperfine a nivelului fundamental $3S$, care corespunde componentelor cu aceeași valoare a lui J, cît și mărimea despicării nivelului $4D$ care este determinată de două componente vecine, fie la dreapta, fie la stînga spectrului.

Folosind nivelele intermediare $3\ P_{3/2}$ și $3\ P_{1/2}$ se poate obține o creștere accentuată a absorbției în cazul rezonanței corespunzătoare tranzițiilor $3S(F = 2) \to 4D_{5/2}$ și $3S(F = 2) \to 4D_{3/2}$, acordînd frecvența primului laser pe frecvența corespunzătoare tranziției $3S \to 3P$ (fig. 20.21) [176].



$\frac{1}{\hbar}\left[E_{4d^2D} - E_{3D^2S}\right]$ (GHz)

Fig. 20.20

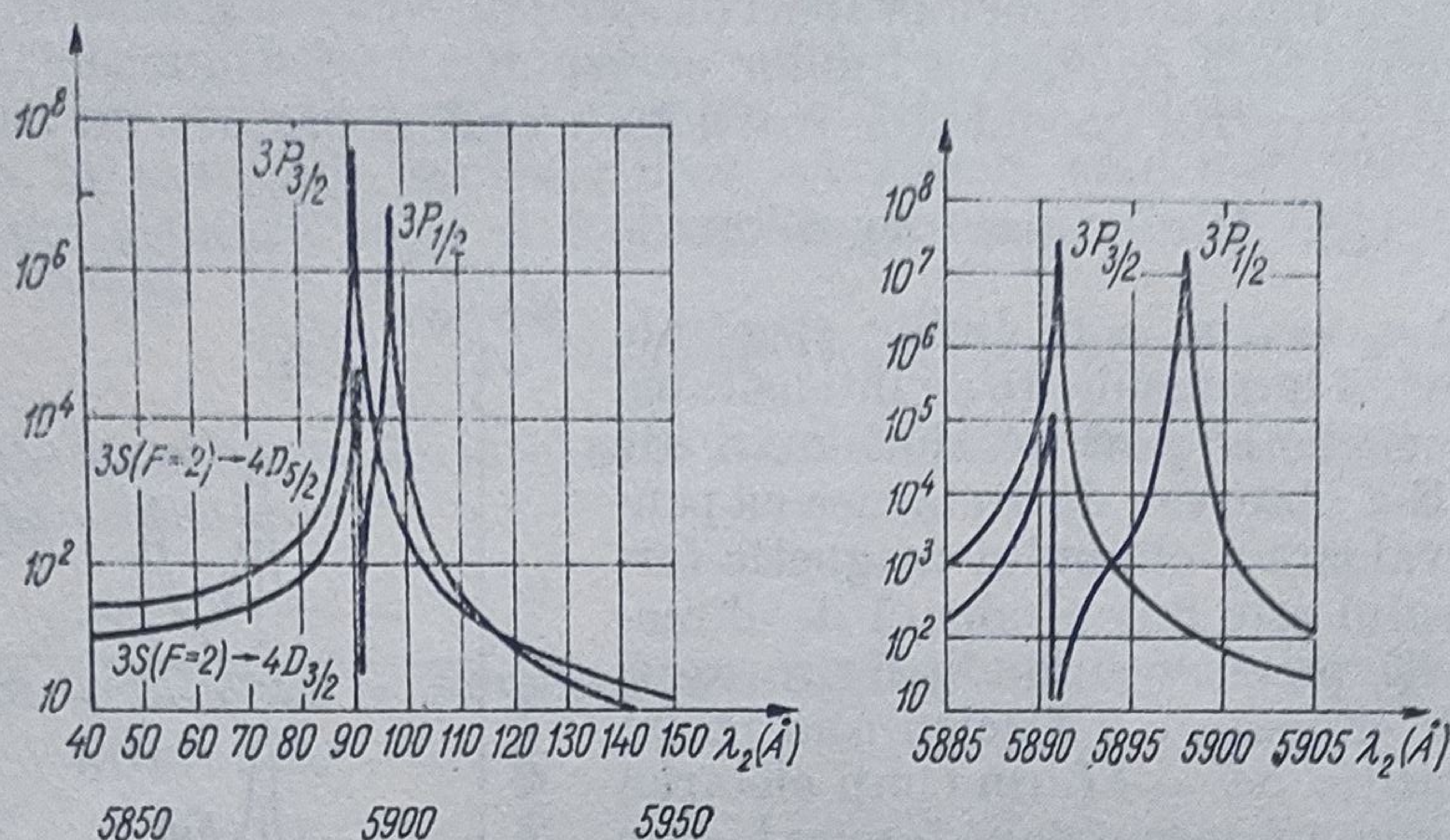


Fig. 20.21

20.6. Experiențe privind lărgirea liniilor spectrale datorită ciocnirilor

Metodele folosite în spectroscopia laser cu putere de rezoluție foarte înaltă permit o mai bună investigare a influenței ciocnirilor asupra formei liniilor spectrale întrucît se bazează pe rezonanțele înguste obținute în interiorul conturului Doppler.

În cazul gazelor aflate la presiuni scăzute (cîțiva torri) pentru care sînt valabile modelele binare ale ciocnirilor, iar frecvența ciocnirilor este comparabilă cu rata relaxării nivelelor, modelele teoretice elaborate privind lărgirea și deplasarea liniilor spectrale sînt în bună concordanță cu rezultatele experimentale obținute.

Primele investigații privind modul în care ciocnirile determină „Lamb-dip"-ul, au fost făcute folosind un laser cu He-Ne și a fost studiată influența atomilor de He asupra liniilor neonului cu $\lambda = 0{,}63\ \mu m$ și $\lambda = 1{,}15\ \mu m$ [161]. Ținînd seama că forma „Lamb-dip"-ului poate fi determinată din dependența puterii laserului de frecvență (capitolul 17)

$$P(\Omega) = A \frac{\eta - \exp(\Omega/ku)^2}{1 + \dfrac{a\gamma^2}{\Omega^2 + \gamma^2}} \tag{20.19}$$

unde $a = \dfrac{1}{1 + \tilde{\alpha}}$, $\tilde{\alpha}$ este un parametru care determină saturația, η reprezintă excesul față de cîștigul inițial, iar A este un coeficient de scală care nu depinde de frecvență, s-a constatat o bună concordanță între semilărgimea „Lamb-dip"-ului calculată cu relația (20.19) și cea măsurată experimental, în limitele admise de erorile experimentale. Se poate considera că la presiuni scăzute lărgimea „Lamb-dip"-ului este determinată în principal de ciocniri și depinde liniar de presiune, iar caracterul omogen al saturației și descreșterea adîncimii sale sînt asociate cu „tăria" ciocni-

rilor. S-a constatat şi experimental o dependenţă liniară a lărgimii „Lamb dip"-ului de presiune cu o pantă de 60 MHz/torr [161].

Deplasarea liniei Ne cu $\lambda = 0,63$ μm datorită ciocnirilor atomilor de Ne cu cei de He poate fi măsurată cu ajutorul unui laser cu He-Ne care are „Lamb-dip"-ul stabilizat. Odată cu schimbarea presiunii, deplasarea frecvenţei laserului stabilizat obţinută experimental este determinată de ciocniri. Cercetîndu-se deplasarea centrului „Lamb-dip"-ului în comparaţie cu spectrul laserului cu He-Ne care are o celulă cu absorbant (Ne), s-a constatat că pentru presiuni mai mici de 0,1 torr în celulă nu există practic o deplasare a maximului puterii. Deci deplasarea frecvenţei laserului cu He-Ne este datorată ciocnirilor cu atomii de He. Deplasări liniare ale liniei cîştigului spre ultraviolet de ordinul 20 ± 2 MHz şi 16 ± 2 MHz/torr au fost obţinute pentru izotopii ^{3}He respectiv ^{4}He.

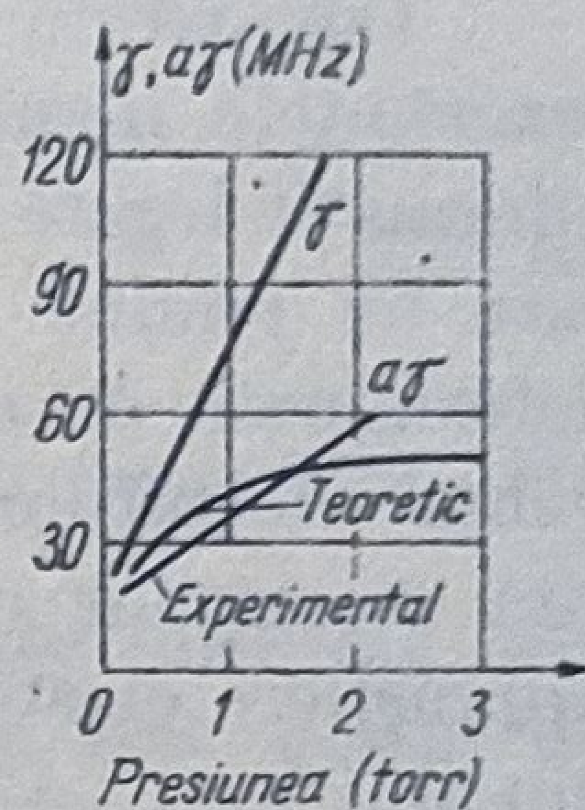


Fig. 20.22

În cazul ciocnirilor „slabe" dependenţa lărgimii „Lamb-dip"-ului de presiunea gazului este neliniară şi este legată de influenţa ciocnirilor asupra distribuţiei particulelor după viteze.

În figura 20.22 sînt prezentate dependenţele parametrilor γ şi $a\gamma$ de presiune într-o mixtură de He-Ne pentru linia cu $\lambda = 0,63$ μm, pe baza datelor din lucrarea [161].

Linia continuă, calculată pe baza modelelor teoretice este în bună concordanţă cu valorile obţinute experimental [161].

20.6.2. Mecanisme de ciocnire

În timp ce rezultatele experimentale care caracterizează lărgimile liniilor se pot obţine relativ uşor, elaborarea unor modele fizice de interpretare a proceselor de ciocnire şi alegerea mecanismelor potrivite, este mult mai dificilă.

Pentru a se determina mecanismele de ciocnire şi pentru a se obţine informaţii asupra constantelor de interacţie este necesar să fie făcute investigaţii complexe ca:

a) măsurarea simultană a conturului Doppler şi a rezonanţelor înguste datorită ciocnirilor;

b) analiza formei rezonanţelor înguste şi a conturului Doppler a liniilor spectrale;

c) investigarea ciocnirilor „tari" în conexiune cu schimbul excitaţiei de rezonanţă;

d) studiul deplasării liniilor şi întinderii lor datorită ciocnirilor;

e) investigarea dependenţei de temperatură a lărgimii şi deplasării liniilor spectrale, precum şi a dependenţei lărgimii omogene de dezacordul frecvenţelor;

f) studiul dependenţei lărgimii liniei de numărul cuantic principal al nivelelor.

Comparînd lărgimea conturului Doppler datorită ciocnirilor, cu rezonanţele înguste în cazul liniei cu $\lambda = 0{,}63$ µm a neonului se obţin informaţii legate de contribuţia împrăştierii elastice. În cazul ciocnirilor care nu produc o modificare a fazelor, lărgimea „Lamb dip"-ului este determinată de caracteristicile împrăştierii unghiulare [161]. Dacă frecvenţa ciocnirilor este mică şi $ku\theta \gg \gamma$, lărgimea „Lamb dip"-ului datorită ciocnirilor este determinată numai de secţiunea totală eficace de împrăştiere elastică. Dacă $ku\theta < \gamma$, ciocnirile nu produc lărgirea „Lamb dip-ului".

Comportarea conturului Doppler în astfel de ciocniri ($ku\theta > \gamma$) diferă calitativ de cea a „Lamb-dip-"ului, rezultînd o scădere a vitezei (u) atomilor şi o îngustare a liniilor. Astfel, diferenţa între lărgimea celor două contururi este determinată de contribuţia ciocnirilor elastice.

În cazul ciocnirilor care produc o modificare a fazelor nu există diferenţă între lărgirea rezonanţelor şi lărgirea conturului Doppler. O contribuţie adiţională la lărgirea rezonanţelor poate fi determinată de împrăştierea unghiulară a atomilor în urma ciocnirilor, ea conducînd la o micşorare a „dip"-ului în distribuţia atomilor după viteze. Această contribuţie adiţională depinde neliniar de presiune.

Pentru linia cu $\lambda = 0{,}63$ µm a Ne, lărgimea ei este mai mică decît lărgimea „dip"-ului. Cu creşterea presiunii, unghiul de ciocnire creşte proporţional cu rădăcina pătrată a densităţii în timp ce lărgimea datorită fazelor dezordonate creşte proporţional cu densitatea gazului. Deci la presiuni de ordinul a cîtorva torri contribuţia difuziei atomilor este foarte mică în comparaţie cu lărgirea datorată fazelor dezordonate.

Saturarea omogenă şi reducerea adîncimii „dip"-ului se datoresc ciocnirilor „tari". Studiul transferului excitaţiei prin schimbarea vitezei în sistemele cu trei nivele a arătat că schimbarea vitezei prin excitarea atomului este datorată absorbţiei radiaţiei la rezonanţă şi nu ciocnirilor.

Aceste efecte apar în special în cazul liniei cu $\lambda = 1{,}15$ µm.

Studiul lărgirii liniilor neonului datorită ciocnirilor funcţie de numărul cuantic principal evidenţiază noi mecanisme de interacţie. În fig. 20.23 este prezentată dependenţa lărgirii liniilor datorită ciocnirilor, funcţie de numărul cuantic n al nivelelor pentru liniile 5852 Å ($n = 3$), 11522 Å ($n = 4$), 6328 Å ($n = 5$), 5349 Å ($n = 6$), 4892 Å ($n = 7$).

Diferenţa lărgimii liniilor poate fi atribuită nivelelor care aparţin unei anumite configuraţii ns. Din graficul obţinut experimental (1) se

observă existența unui minim care corespunde lui $n = 4$. Întrucît unul din nivelele implicate în tranziții este rezonant se poate presupune că unul din mecanismele de lărgire a liniilor este determinat de schimbul rezonant al excitației datorită ciocnirilor. Lărgimea liniei datorită transferului rezonant poate fi calculată din formula

$$\frac{\partial \gamma}{\partial p} = 5{,}7 \tilde{\lambda}^3 N w \qquad (20.20)$$

unde $\tilde{\lambda} = \frac{\lambda}{2\pi}$, λ fiind lungimea de undă a radiației de rezonanță, iar w este probabilitatea tranziției rezonante. Valorile experimentale ale lărgimii liniei datorită transferului rezonant al excitației sînt destul de apropiate de cele calculate teoretic (fig. 20.23 curba 2) cu relația (20.20) pentru linia cu $\lambda = 5852$ Å ($n = 3$) ele fiind chiar egale. Odată cu creșterea numărului cuantic principal, prin reducerea lui w se obține o descreștere a lărgimii datorită transferului rezonant al excitației prin intermediul ciocnirilor. Pentru nivele excitate cu număr cuantic principal mai mare ca 7, lărgimile liniilor datorită transferului rezonant devin foarte mici, forțele de schimb jucînd în acest caz un rol foarte important.

Dacă nu este îndeplinită condiția de rezonanță, forțele de interacție sînt caracterizate de dependența lărgimii liniilor de viteza relativă a atomilor care se ciocnesc. Această dependență poate fi folosită pentru a caracteriza tipul de interacție. Întrucît viteza medie a atomilor care se ciocnesc depinde de temperatură și lărgimile liniilor datorită ciocnirilor și deplasările lor sînt funcție, de asemenea, de temperatură. În unele cazuri, dependența lărgimii de viteză poate fi obținută măsurînd lărgimile liniilor omogene pentru diferite valori ale dezacordului frecvențelor față de centrul liniei. În cazul liniilor neonului se obțin următoarele valori : 20 ± 2, 30 ± 5, 44 ± 5 MHz. Aceste diferențe pot fi explicate dacă se admite o dependență a lărgimii liniilor de vitezele atomilor. Rezonanța neliniară corespunzătoare centrului liniei este legată de atomii ale căror proiecții ale vitezelor pe axa de observație sînt zero ($v_z = 0$) și conturul Doppler al liniilor rezultate în urma emisiilor spontane se obține în urma emisiei atomilor cu viteze diferite $v_z - u$.

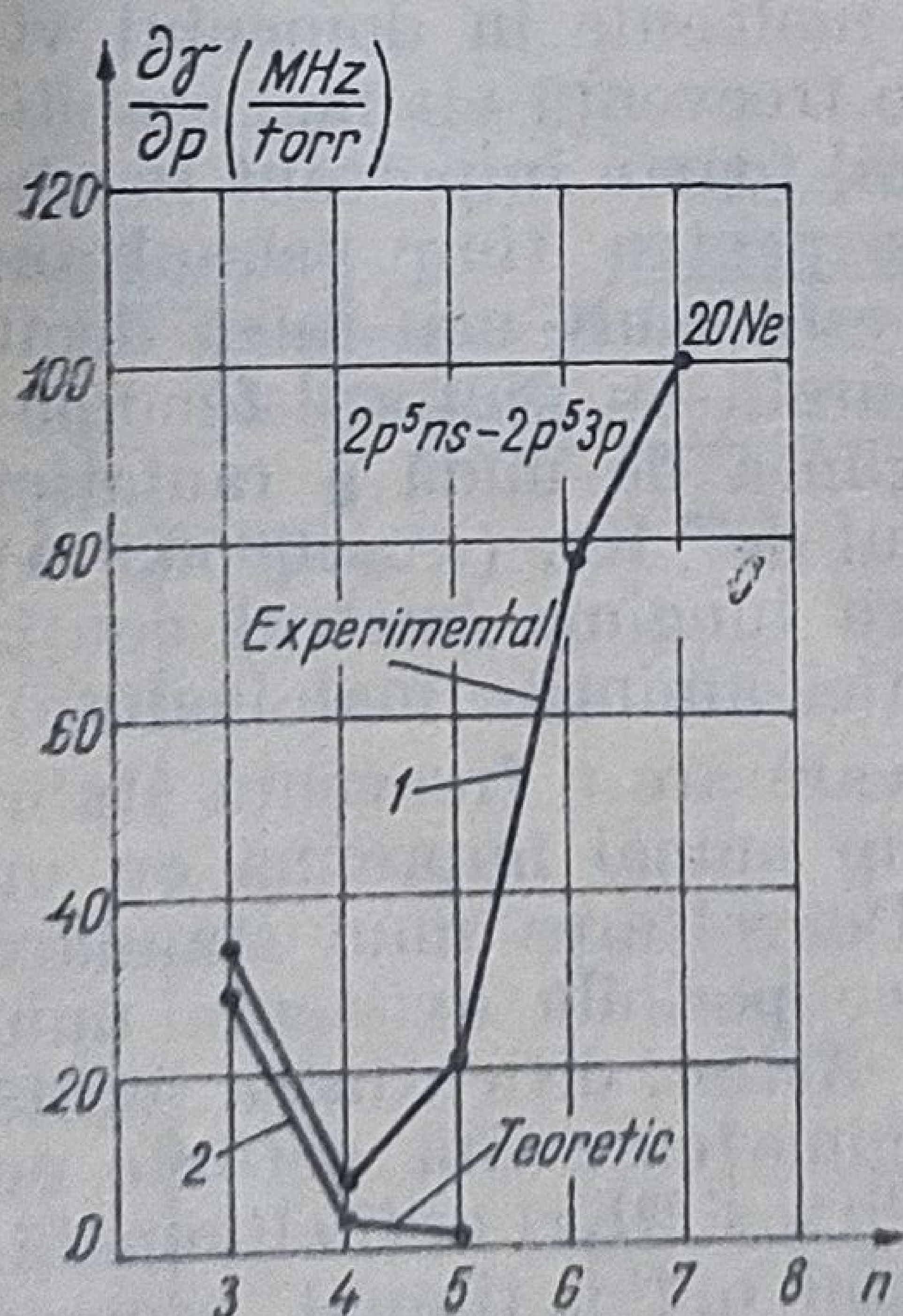


Fig. 20.23

21. APLICAȚII ÎN ȘTIINȚĂ ȘI INGINERIE

21.1. Tehnici experimentale utilizate pentru stabilizarea în frecvență a laserilor folosind rezonanțele înguste

Una din cele mai importante cuceriri ale electronicii cuantice în domeniul microundelor este legată de descoperirea standardului pasiv de frecvență care folosește cesiul și anume tranzițiile între nivelele hiperfine, cu $F = 4$, $m_F = 0 \rightarrow F = 3$, $m_F = 0$ ale stării fundamentale a izotopului ^{133}Cs în absența cîmpurilor exterioare [161]. Acesta este acceptat ca standard internațional cu frecvența 9192631770,0000 Hz. De asemenea, o frecvență foarte bine stabilizată ($2 \cdot 10^{-14}$Hz/zi) se obține într-un laser cu hidrogen ca rezultat al tranzițiilor între nivelele cu $F = 1$, $m_F = 0$ și $F = 0$, $m_F = 0$ ale stării fundamentale a H.

Tranzițiile cuantice suferite de atomi și molecule în domeniul vizibil au fost folosite pentru a obține laseri cu o frecvență cît mai stabilizată. Laserii stabilizați în frecvență joacă un rol foarte important în obținerea standardelor atît pentru lungime cît și pentru timp, simultan. Întrucît lungimea de undă în domeniul optic este mult mai mică decît dimensiunile obiectelor, lungimea poate fi măsurată cu ajutorul fenomenului de interferență. Din această cauză lungimea de undă a radiației obținută în urma tranziției $2p_{10}-5d_5$ din atomul de^{86} Kr, ($\lambda = 6056{,}9$ Å) este adoptată ca standard internațional pentru lungime (metrul conținînd 1.650.763,73 lungimi de undă ale tranziției amintite mai înainte).

Un generator cuantic în domeniul optic care are o frecvență stabilizată poate servi ca standard cuantic de timp numai împreună cu un instrument de măsură a frecvențelor optice. Dezvoltarea unui standard cuantic de frecvență în domeniul optic ar face posibilă existența unui singur standard pentru timp și pentru lungime. Astfel, dificultatea legată de unitățile internaționale pentru timp și lungime care sînt definite cu ajutorul liniilor spectrale a doi atomi diferiți (^{133}Cs și ^{86}Kr) ar fi eliminată. De asemenea, folosind un standard în domeniul optic, timpul necesar pentru măsurarea frecvenței sau intervalelor de timp cu o anumită acuratețe ar scade foarte mult, pentru că acuratețea măsurărilor pentru frecvență pentru un anumit interval de timp dat este invers proporțională cu frecvența.

Pentru a obține un laser cu frecvența cît mai stabilizată este necesar să fie îndeplinite următoarele condiții :

— frecvența de referință trebuie să fie stabilă și reproductibilă, cel puțin tot atît de stabilă cît se cere pentru funcționarea unui laser;

— lărgimea curbei de rezonanță a frecvenței cerute să nu depășească stabilitatea cerută cu un factor mai mare decît 10^3 pînă la 10^4.

Pentru a obține o stabilizare în frecvență și o reproductibilitate de ordinul 10^{-13} este necesară obținerea unor rezonanțe cu aceeași stabilitate ca a centrului liniei și o lărgime relativă de aproximativ $10^{-9}-10^{-10}$. Pentru aceasta trebuie ca tranzițiile cuantice ale atomilor și moleculelor între starea inițială și finală să fie foarte puțin perturbate de ciocniri și de cîmpuri exterioare. Totuși, din cauza lărgimii liniilor spectrale în gaze datorită efectului Doppler care determină o valoare relativă de ordinul $10^{-5}-10^{-6}$ condiția a doua nu este îndeplinită. Deci este necesar să fie dezvoltate diferite metode de îngustare a liniilor spectrale.

Un pas hotărîtor în obținerea unor linii spectrale cît mai înguste a fost făcut prin folosirea saturării absorbției în celulele cu gaz la presiune scăzută. A urmat o dezvoltare rapidă a acestor metode astfel încît între anii 1967—1972 stabilizarea în frecvență a laserilor a crescut de la 10^{-8} la 10^{-14}. În același timp au fost dezvoltate și metode de măsurare absolută a frecvențelor oscilațiilor optice.

21.1.1. Stabilizarea în frecvență a laserilor cu ajutorul unei celule cu absorbant plasată în interiorul cavității

Schema bloc folosită pentru stabilizarea laserilor în frecvență, prin maximul puterii, cu ajutorul unei celule cu absorbant plasată în cavitate este prezentată în fig. 21.1 (§17.4).

Maximul puterii se obține prin acordarea frecvenței laser modulate

$$\tilde{\nu} = \nu + \delta \cos(2\pi ft) \tag{21.1}$$

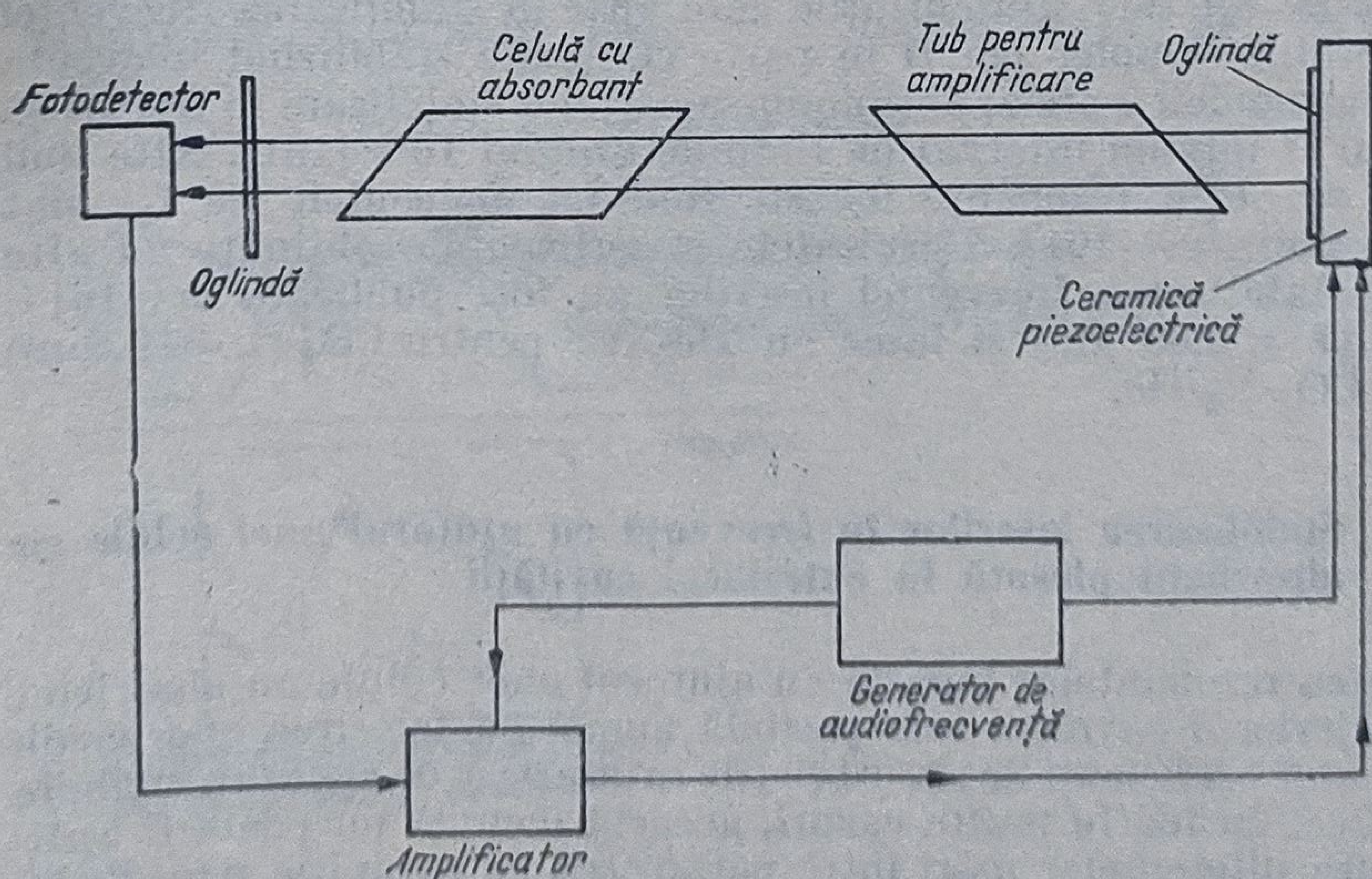


Fig. 21.1

cu frecvența corespunzătoare rezonanței.

Cînd frecvenţa laserului nu este acordată cu cea corespunzătoare rezonanţei, la ieşire se obţine un semnal modulat în amplitudine cu frecvenţă *f*. Acest semnal este folosit pentru a controla frecvenţa cavităţii (de exemplu, pentru a acorda frecvenţa generată cu cea corespunzătoare rezonanţei). Acordul frecvenţei poate fi făcut cu ajutorul unui servosistem care controlează poziţia uneia dintre oglinzile cavităţii.

Primele experienţe legate de stabilizarea laserilor în frecvenţă au fost făcute cu un laser cu He-Ne ($\lambda = 6328$ Å) în a cărui cavitate a fost plasată o celulă cu Ne la presiunea de 0,1 torr. Lărgimea maximului puterii a fost de 20—40 MHz şi se datoreşte în principal lărgimii naturale (20 MHz) a liniilor spectrale şi ciocnirilor (24 MHz/torr). Folosind celule în care presiunea este cuprinsă între 0,1 şi 0,3 torr eficienţa conversiei puterii este aproape de 100%. Pentru a elimina zgomotul în tubul de descărcare se poate folosi o tensiune alternativă cu frecvenţă foarte înaltă. Nivelul zgomotului semnalului la ieşire şi schema folosită pentru obţinerea unei frecvenţe acordabile, prin reglarea lungimii cavităţii permit obţinerea unei frecvenţe cu o acurateţe de 0,1 MHz. Reproductibilitatea semnalului la ieşire este limitată de ciocniri, care produc deplasarea liniei spectrale (mărimea deplasării fiind în final funcţie de curentul de descărcare), de perturbaţii mecanice, de zgomotele din domeniul acustic şi de gradul permanenţei descărcării în celulele cu mediul activ şi cu absorbant.

Limitările privind stabilizarea în frecvenţă şi reproductibilitatea datorită lărgimii naturale a liniilor spectrale şi deplasărilor lor datorită ciocnirilor sînt inerente în montajele care folosesc celule cu absorbant plasate în interiorul cavităţii laserului. Pentru a obţine rezonanţe înguste se pot selecţiona diferiţi absorbanţi moleculari pentru linia cu $\lambda = 6328$ Å a unui laser cu He-Ne. Cele mai bune rezultate au fost obţinute folosind ca absorbant I_2 pentru că una din liniile sale de absorbţie în stare de vapori coincide cu linia laserului cu He-Ne (cu $\lambda = 6328$ Å). Se obţine astfel la ieşire o rezonanţă îngustă cu o lărgime de 4,5 MHz şi o eficienţă de 0,1% la o presiune de 0,1 torr. Dificultăţile care apar în stabilizarea frecvenţei datorită efectului Doppler pot fi în parte eliminate stabilizînd frecvenţa pe semnalul armonicii a treia, obţinîndu-se astfel o stabilizare în frecvenţă de ordinul 10^{-13} într-un interval de timp de ordinul 10^3s [161]. Alte linii pentru care se obţin rezonanţe înguste folosind moleculele de I_2 sînt publicate în lucrarea [161]. Rezultatele experimentale obţinute cu alte gaze pentru stabilizarea frecvenţei laserilor au fost publicate în [161]; pentru CH_4 ($\lambda = 3,39$ μm) şi laser cu He-Ne; pentru CO_2 ($\lambda = 10,6$μm) şi laser cu CO_2-N_2-He.

21.1.2. Stabilizarea laserilor în frecvenţă cu ajutorul unei celule cu absorbant plasată în exteriorul cavităţii

Obţinerea rezonanţelor înguste cu ajutorul unor celule cu absorbant plasate în interiorul cavităţii este posibilă numai cu folosirea unor medii neliniare a căror coeficienţi de absorbţie, de saturaţie şi de cîştig au anumite valori specifice. În foarte multe cazuri, această metodă nu poate fi aplicată din cauza diferenţelor mari între parametrii de saturaţie ai mediului activ şi ai absorbatului. În astfel de cazuri saturarea absorbţiei luminii unui laser poate fi obţinută prin plasarea celulei cu absorbant în exteriorul cavităţii întrucît apare un „Lamb-dip'' în cîmpul undelor staţionare

sau un „dip'' în absorbție pentru o undă mai puțin intensă care se propagă în sens opus (§17.6 ; 17.5).

Folosind o celulă plasată în exteriorul cavității, se elimină influența absorbantului neliniar asupra frecvenței și amplitudinii oscilațiilor laserului, iar configurația spațială a cîmpului undelor luminoase poate fi controlată și variată, obținîndu-se astfel optimizarea lărgimii și amplitudinii rezonanțelor înguste. De asemenea, astfel se evită „tîrîrea'' frecvenței spre maximul liniei de cîștig și se poate obține o absorbție dirijată.

Schema folosită în acest caz pentru stabilizarea frecvenței este aceeași cu cea prezentată în fig. 21.1, diferența constînd în faptul că frecvența poate fi modulată în afara cavității folosind un modulator special de fază.

În cazul unui laser cu He-Ne se poate folosi o celulă exterioară cu Ne, supusă unei descărcări continue, obținîndu-se astfel o stabilizare a unei singure frecvențe ($\lambda = 6328$ Å) [161]. Cu ajutorul unui polarizor și a unei lame „sfert de undă'' (izolator optic) se elimină influența undei care se propagă înapoi și se obține o undă circular polarizată în celula de absorbție. Poziția centrului liniei de absorbție poate fi variată cu ajutorul unui cîmp magnetic variabil. Se obține un control al frecvenței laserului fără modulație și o reproductibilitate de ordinul 10^{-9} care este limitată numai de deplasarea frecvenței centrului liniei de absorbție pentru diferiți curenți de descărcare.

Stabilizarea laserului cu CO_2 pentru $\lambda = 10{,}6$ μm poate fi făcută cu ajutorul unei rezonanțe înguste obținută în spectrul de absorbție al SF_6 cu care este umplută celula cu absorbant. Absorbția puternică a SF_6 pentru cîteva linii ale laserului cu CO_2 permite variația presiunii cu 10^{-3}—10^{-2} torr și obținerea unor rezonanțe înguste a căror lărgimi variază între 0,3 și 0,1 MHz. În figura 21.2 este prezentată forma unei rezonanțe obținută în transmisie pentru o celulă cu SF_6 și poziția relativă față de linia cîștigului laserului cu CO_2.

Stabilizarea laserilor în frecvență cu ajutorul celulelor cu absorbant plasate atît în cavitatea laser, cît și în exteriorul ei nu poate fi aplicată în

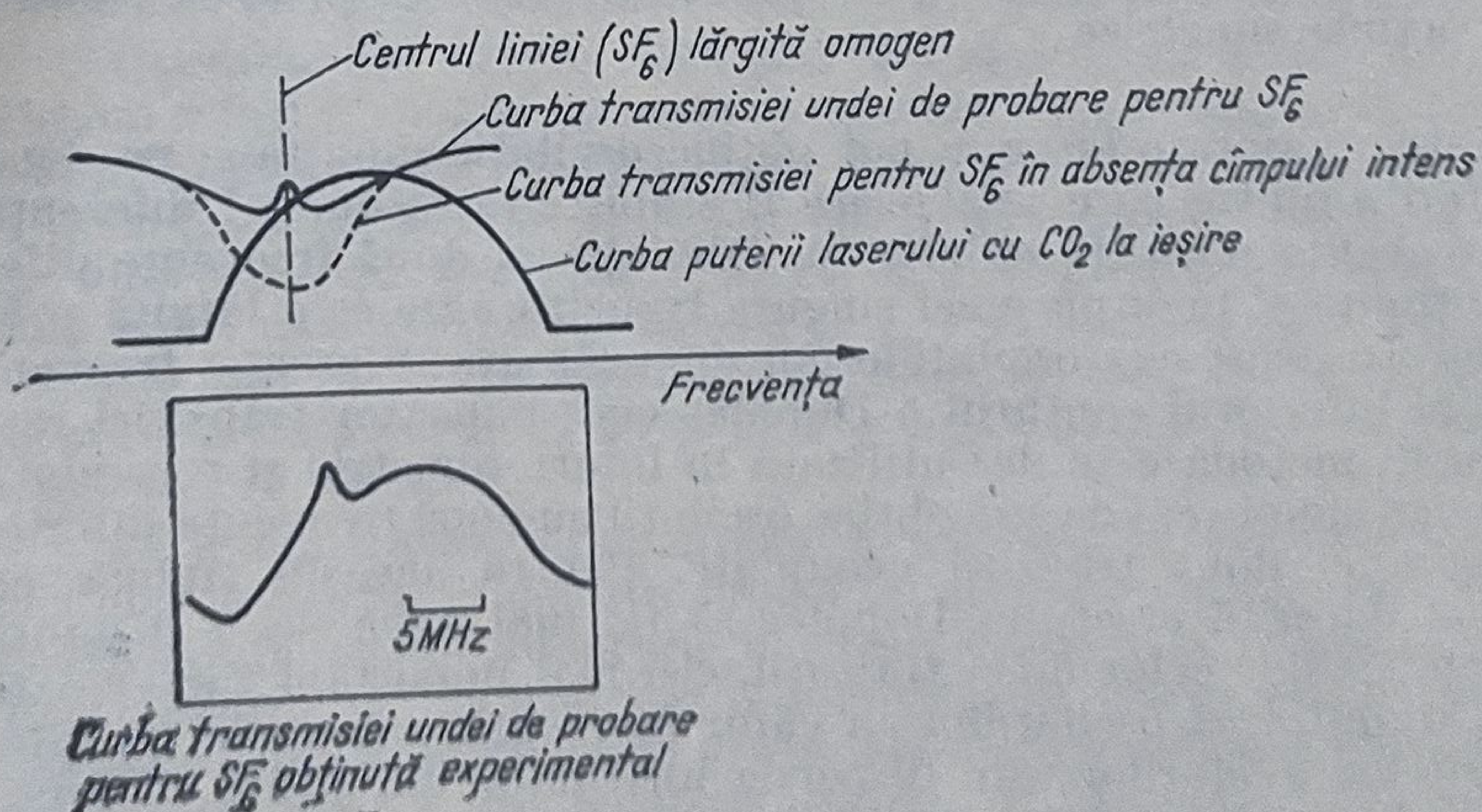


Fig.21.2

cazul tranzițiilor cu coeficient de absorbție mic pentru care $K_{ob}l_{ob} \ll 10^{-2}$ (K_{ob} este coeficientul de absorbție inițial pe unitatea de lungime, iar l_{ob} este lungimea celulei).

S-a observat că în urma interacţiei dintre o radiaţie laser intensă, cu o anumită frecvenţă şi un atom care execută o tranziţie lărgită prin efect Doppler, avînd frecvenţa egală cu cea a radiaţiei laser, rezonanţele obţinute în fluorescenţa intensă rezultată sînt foarte înguste şi sînt determinate de saturarea coeficientului de absorbţie în cîmpul undelor staţionare [161] (cap. 17.4). În cazul absorbţiei CO_2 la presiune scăzută, aceasta a fost saturată de o radiaţie intensă provenită de la un laser cu CO_2, iar radiaţia de fluorescenţă obţinută de pe nivelul superior are $\lambda = 4{,}3$ µm. Sensibilitatea metodei este destul de mare, ţinînd seama că tranziţiile între nivelele excitate ale moleculei de CO_2 au loc cu un coeficient de absorbţie de $1{,}5 \cdot 10^{-6}$ cm^{-1} la o temperatură de 300 K, iar stabilizarea în frecvenţă este de aproximativ 10^{-11}.

O altă metodă utilizată pentru stabilizarea laserilor în frecvenţă este cea care foloseşte competiţia între două unde care se propagă în sens contrar într-un laser inelar . Astfel, frecvenţele a doi laseri independenţi cu He-Ne şi celulă cu CH_4 aflat la o presiune de 10 mtorr, au fost stabilizate în urma competiţiei între rezonanţe, obţinîndu-se o stabilitate în frecvenţă de $5 \cdot 10^{-14}$.

Competiţia între rezonanţe mai poate avea loc şi într-un laser cu cavitate liniară dacă se selectează două moduri axiale care sînt simetrice faţă de linia cîştigului. În urma cuplajului neliniar între aceste două moduri, competiţia între rezonanţe dă naştere unei linii care are lărgimea mai mică decît lărgimea omogenă. Folosind un laser cu He-Ne şi celulă cu CH_4 s-a obţinut o stabilizare în frecvenţă de ordinul $3 \cdot 10^{-13}$ [161].

O altă metodă utilizată pentru stabilizarea laserilor în frecvenţă este cea care foloseşte autostabilizarea frecvenţei. Autostabilizarea apare în urma fenomenului de „tîrîre" a frecvenţei laserului spre centrul liniei de absorbţie, rezultînd un maxim îngust în linia cîştigului efectiv [161]. Se elimină astfel fluctuaţiile frecvenţei laserului, operaţie care este dificil de realizat prin controlul automat al frecvenţei maximului puterii.

21.1.3. Stabilizarea laserilor în frecvenţă cu ajutorul a două moduri axiale simetrice

Dacă într-o cavitate laser se pot obţine oscilaţii simultane pe două frecvenţe diferite dintre care una poate fi stabilizată, atunci şi diferenţa celor două frecvenţe poate fi stabilizată. Oscilaţii cu două frecvenţe diferite pot fi obţinute şi în urma unei singure tranziţii care este lărgită prin efect Doppler. În acest caz oscilaţiile corespunzătoare diferenţei frecvenţelor se află în interiorul conturului Doppler corespunzător tranziţiei respective. Această metodă este des utilizată în interferometrie şi reprezintă una din cele mai simple căi de a se obţine oscilaţii cu două frecvenţe diferite corespunzătoare la două tranziţii necuplate. Pentru aceasta trebuie ca lărgimea liniei datorită efectului Doppler să fie mai mică decît distanţa dintre centrele liniilor celor două tranziţii. Cel mai important factor care influenţează stabilizarea oscilaţiilor a căror frecvenţă este egală cu diferenţa frecvenţelor modurilor este dispersia anormală. Ea poate fi eliminată printr-o alegere potrivită a condiţiilor de operare ; de exemplu, dacă frecvenţa oscilaţiei rezultante depăşeşte cu mult lărgimea liniei cîştigului fiecărei tranziţii, lungimea cavităţii poate fi astfel aleasă încît frecvenţele să fie situate în centrele liniilor fiecărei tranziţii.

În primele realizări experimentale s-a folosit un laser cu He-Ne și o celulă cu metan, ca absorbant [161]. Diferența frecvențelor între modurile axiale generate a fost de 450 MHz cu un acord continuu pentru frecvența generată de 100 MHz. Variind lungimea cavității, s-a obținut un maxim în puterea la ieșire cu o lărgime de 300 kHz și o eficiență de 3%.

21.2. Măsurarea unor constante fizice fundamentale prin metodele opticii neliniare

Metodele folosite pentru obținerea rezonanțelor înguste în optica neliniară permit o măsurare mult mai precisă a frecvențelor liniilor spectrale care sînt lărgite prin efect Doppler, deci și a constantelor fizice fundamentale care se bazează pe aceste măsurări. De asemenea, rezonanțele moleculare înguste au frecvență bine determinată și sînt des folosite la stabilizarea oscilațiilor laser în frecvență, aceasta asigurînd o acuratețe foarte înaltă măsurărilor constantelor fundamentale care necesită surse optice stabilizate în frecvență.

21.2.1. Măsurarea vitezei luminii

Măsurarea vitezei luminii poate fi făcută și prin măsurarea exactă a lungimii de undă și a frecvenței oscilațiilor luminoase. Una dintre metodele de măsurare directă și exactă a frecvenței oscilațiilor electromagnetice în domeniul optic se bazează pe transformarea frecvenței radiațiilor oscilatorilor din domeniul microundelor în frecvențe din domeniul vizibil al spectrului. Pentru aceasta sînt necesari laseri cu funcționare în regim continuu, stabilizați în frecvență, în domeniul microundelor și I.R. și de asemenea, elemente neliniare care să nu aibă inerție în aceste domenii.

Operația de mixare neliniară a radiației laser cu armonicile unui clistron a fost făcută în primele experiențe cu ajutorul unei diode cu siliciu [161]. Radiația laser intensă poate fi considerată ca oscilație de referință în detecția unui semnal slab provenit de la armonicile de ordin superior ale unui clistron. Folosind această metodă au fost măsurate freventele unor laseri cu HCN ($\lambda = 337$ μm și $\lambda = 311$ μm) și DCN ($\lambda = 194$ μm și $\lambda = 190$ μm) [161]. În ultimul caz frecvența laserului a fost heterodinată cu armonicile de ordinul 22 și 23 ale unui clistron care funcționa pe frecvența de 70 GHz.

O îmbunătățire substanțială a metodei prezentate mai înainte a fost obținută prin înlocuirea diodei cu siliciu cu un metal, neliniaritatea apărînd în punctul contactului mecanic dintre un filament metalic subțire (1—2μm) de tungsten și o suprafață de cîțiva nm de nichel. Acest dispozitiv (diodă cu contact) a fost plasat în exteriorul ghidului de undă, iar radiația laser a fost focalizată direct pe filament, lîngă contact. Frecvența armonicii rezultată din diferența semnalelor mixate în domeniul microundelor a fost detectată în urma heterodinării cu un semnal provenit de la un clistron cu frecvența tot în domeniul microundelor și apropiată de aceasta [161]. Folosind astfel de montaje experimentale s-a obținut o mixare a semnalelor cu frecvențe foarte înalte situate în domeniul 10^{14}Hz.

De asemenea, au fost măsurate frecvențele absolute ale unor laseri cu funcționare în regim continuu în H_2O ($\lambda = 78$ μm și $\lambda = 28$ μm), CO_2 (liniile P (18) și P (20) ale benzii cu $\lambda = 10,6$ μm) și a laserului cu He-Ne cu $\lambda = 3,39$ μm [161].

În figura 21.3 este prezentat montajul experimental folosit pentru măsurarea frecvenței laserului cu He-Ne.

Operația de măsurare se realizează în mai multe etape. În primul rînd a fost măsurată frecvența liniei $R(10)$ a benzii cu $\lambda = 10,6$ μm a unui laser cu CO_2. Această măsurare include și măsurarea frecvențelor laserilor cu HCN ($\lambda = 337$ μm) și H_2O ($\lambda = 28$ μm). Frecvența armonicii a treia a laserului cu CO_2 este apropiată de frecvența stabilizată a laserului cu He-Ne/CH_4. În al doilea rînd a fost măsurată diferența frecvențelor a

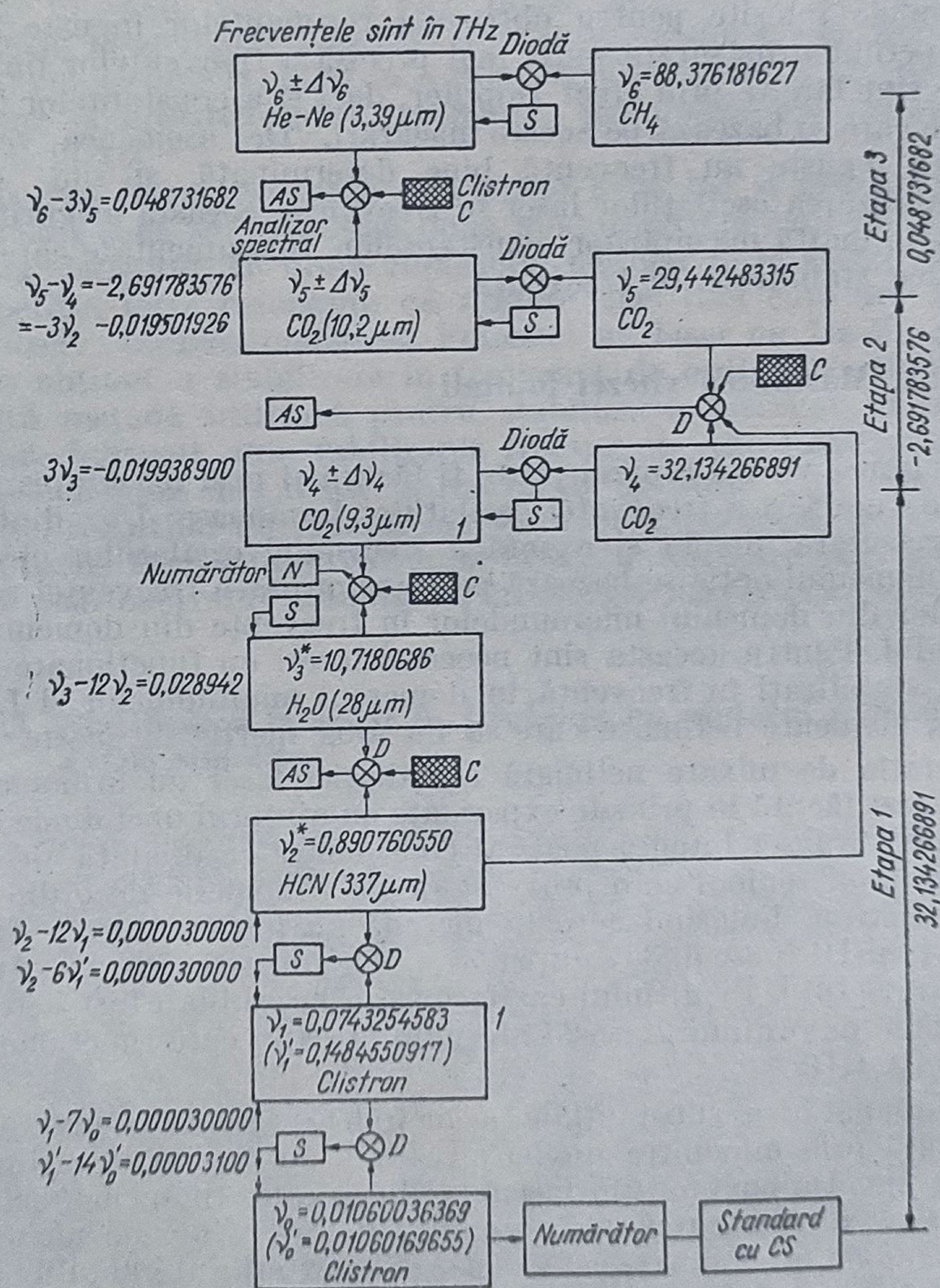


Fig.21.3

două linii ale laserilor cu CO_2 prin comparație cu diferența frecvențelor laserului cu HCN care are $\lambda = 337$ μm. Semnalele provenite de la trei laseri stabilizați în frecvență servesc ca oscilatori de referință pentru lase-

rul cu He-Ne şi pentru cei doi laseri cu CO_2. Scala de frecvenţă a fost calibrată cu ajutorul unui standard cu Cs. Frecvenţele măsurate ale laserilor cu He-Ne şi CO_2 sînt prezentate în tabelul 21.1.

Tabelul 21.1

Molecule	Linia	Frecvenţa (THz)	λ(μm)
$^{12}C^{16}O_2$	$R(30)$	29,442 483 315	10,18
$^{12}C^{16}O_2$	$R(10)$	32,134 266 891	9,3
$^{12}CH_4$	$R(7)$	88,376 181 627	3,39

Măsurînd independent lungimea de undă a unui laser cu $He-Ne/CH_4$, prin compararea interferometrică cu lungimea de undă a standardului internaţional ^{86}Kr s-a obţinut pentru $\lambda_{CH_4} = 3{,}392231376\mu m$. Astfel, pentru viteza luminii s-a obţinut valoarea $c = 299\,792\,456{,}2$ m/s cu o acurateţe de $\frac{\delta c}{c} = \pm\, 3{,}6 \cdot 10^{-9}$.

21.2.2. Determinarea constantei lui Rydberg şi a frecvenţelor de tranziţie pentru atomul de hidrogen

Determinarea exactă a structurii şi poziţiei liniilor spectrale joacă un rol foarte important pentru determinarea constantei lui Rydberg R şi a lui $R_\infty = \frac{me^4}{2\hbar^2}$. Constanta R_∞ a fost determinată în majoritatea cazurilor cu ajutorul liniilor hidrogenului, a izotopilor săi şi a heliului. Cel mai potrivit dintre aceste elemente este hidrogenul, pentru că în acest caz este posibilă o comparaţie între rezultatele obţinute experimental şi cele teoretice.

Fără a folosi rezonanţele înguste din optica neliniară, precizia măsurărilor este de $\pm\, 0{,}01$ cm^{-1} [161] obţinîndu-se pentru constanta R_∞ valoarea: $R_\infty = 109737{,}312 \pm 0{,}007$ cm^{-1}, adică o precizie relativă de 10^{-7}. Cea mai potrivită pentru măsurări este linia H_α din seria Balmer a spectrului vizibil. Ea are o lărgime datorita efectului Doppler de aproape 6000 MHz, care maschează cele mai importante detalii ale structurii fine ale liniei.

Folosindu-se metodele spectroscopiei neliniare bazate pe intersecţia nivelelor, în cazul cînd absorbţia a fost saturată cu ajutorul unui laser acordabil în impulsuri, precizia în determinarea lungimii de undă a liniei H_α ($\lambda = 6563$ Å) a crescut foarte mult [161]. În figura 21.4, a este prezentată diagrama teoretică a structurii fine a liniei H_α. Starea $2^2S_{1/2}$ este cu 1058 MHz deasupra stării $2^2P_{1/2}$. Aceasta se explică în electrodinamica cuantică prin aşa-numita deplasare Lamb şi poate fi determinată experimental la temperatura camerei prin metodele absorbţiei neliniare (§ 17.4). În figura 21.4, b şi c sînt prezentate spectrele obţinute cu ajutorul meto-

delor folosite în spectroscopia liniară şi respectiv absorbţiei saturate. Astfel măsurîndu-se lungimea de undă a componentelor liniei H_α, prin metoda absorbţiei saturate cu o precizie de 1 MHz s-a obţinut pentru constanta R_∞ valoarea

$$R_\infty = 109737{,}3143 \text{ cm}^{-1}$$

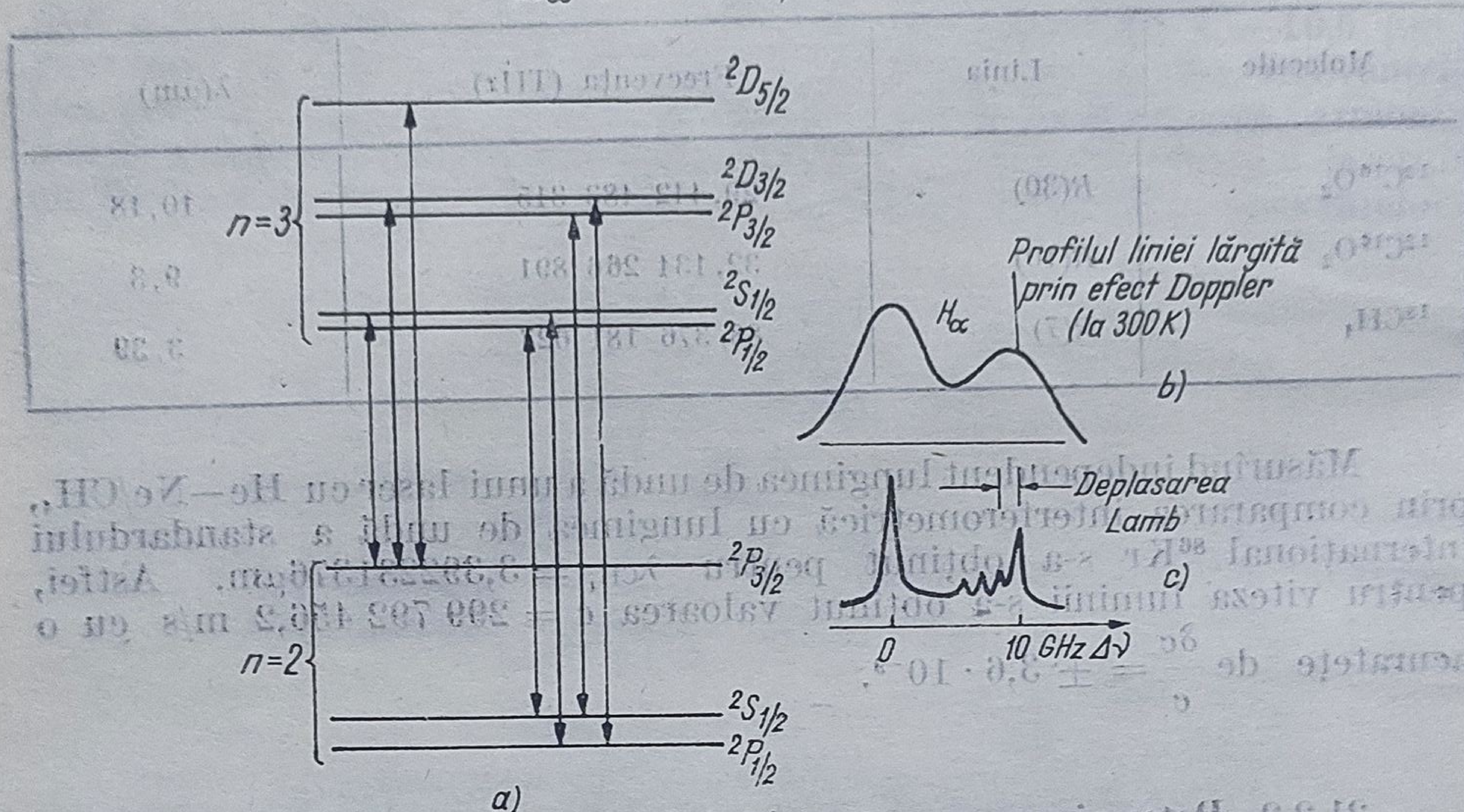


Fig. 21.4

cu o precizie relativă de $1 \cdot 10^{-8}$, care este cu cel puţin un ordin de mărime mai bună decît măsurătorile făcute anterior.

21.3. Determinarea constantelor atomice şi moleculare prin utilizarea metodelor spectroscopiei moleculare

21.3.1. Măsurarea timpilor de viaţă şi a lărgimii naturale a nivelelor

Puterea de rezoluţie obţinută prin metodele spectroscopice clasice este mult diminuată atît de efectul Doppler, cît şi de posibilităţile spectrale ale instrumentelor clasice. Întrucît în domeniul optic al spectrului lărgimea liniilor spectrale ale atomilor în stare gazoasă chiar şi pentru presiuni mai mici de 0,1 torr are acelaşi ordin de mărime cu cea datorată ciocnirilor (10—100 MHz), se pierd informaţii legate de procesele de relaxare, măsurarea timpilor de viaţă ai nivelelor individuale făcîndu-se prin observarea directă a pierderilor rezultate din tranziţiile spontane. Metodele spectroscopice neliniare permit investigarea liniilor spectrale în interiorul conturului Doppler astfel că măsurarea timpilor de viaţă ai nivelelor se face mult mai precis, fiind determinaţi numai de lărgimea naturală a nivelelor implicate.

Primele investigaţii legate de măsurarea lărgimii rezonanţelor înguste au fost făcute pentru un laser cu He—Ne pentru lungimile de undă 0,63 μm şi 1,15 μm corespunzătoare tranziţiilor $3s_2 - 2p_4$ şi $2s_2 - 2p_4$, la presiuni de aproximativ 1 torr. Lărgimea „Lamb-dip"-ului datorită ciocnirilor, măsu-

rată experimental, este de cîteva ori mai mare decît lărgimea naturală a liniei 0,63 μm. Pentru a obține valoarea lărgimii naturale trebuie extrapolată spre zero dependența de presiune a „Lamb-dip"-ului, care este de obicei liniară. Aceeași extrapolare efectuată la presiuni mai mari poate reduce mult acuratețea determinărilor. Folosindu-se această metodă s-a obținut pentru lărgimea liniei 0,63 μm a ^{20}Ne valoarea de 12 MHz care este în bună concordanță cu valorile obținute prin alte metode [161]

Pentru a studia influența ciocnirilor asupra „Lamb-dip"-ului se poate folosi formula care dă dependența puterii laserului de frecvență (capitolul 17) [161]

$$P(\Omega) = A\,\frac{\eta - \exp(\Omega/ku)^2}{1 + \dfrac{a\gamma^2}{\Omega^2 + \gamma^2}} \tag{21.2}$$

unde γ este lărgimea liniei, η reprezintă excesul cîștigului inițial peste valoarea maximă,

$$a = \frac{1}{1 + \tilde{\alpha}} \tag{21.3}$$

$\tilde{\alpha}$ fiind un parametru care depinde de constantele de relaxare ale nivelului, iar A este un coeficient de scală independent de frecvență.

Parametrii care intervin în relația (21.2) pot fi determinați experimental. Astfel, parametrul η poate fi determinat din raportul lungimilor coloanei de descărcare, corespunzătoare cîștigului și pierderilor, $\eta = \dfrac{l_2}{l_1}$, iar parametrul Doppler din relația

$$ku = \frac{\Omega_t}{\sqrt{\ln \dfrac{l_2}{l_1}}}, \tag{21.4}$$

pentru $ku \gg \gamma$, Ω_t fiind frecvența pentru care generarea este întreruptă.

Parametrii Ω_t și γ se obțin prin metoda aproximațiilor succesive. Pentru $\Omega_t = 0$, puterea corespunzătoare centrului liniei este

$$P_0 = A\,\frac{\eta - 1}{1 + a}. \tag{21.5}$$

Pentru un dezacord al frecvenței Ω_a, pentru care puterea la ieșire este egală cu cea în centrul liniei P_0 din relațiile (21.2), (21.5) se obține

$$a = \frac{\eta - 1}{\eta - \exp(\Omega_a/ku)^2}\left(1 + \frac{a\gamma^2}{\gamma^2 - \Omega_a^2}\right) - 1. \tag{21.6}$$

Ținînd seama că

$$\eta = \exp\left(\frac{\Omega_t}{ku}\right)^2 \tag{21.7}$$

în aproximația de ordin zero se obține

$$a^{(0)} = \frac{\exp(\Omega_a/ku)^2 - 1}{\exp(\Omega_t/ku)^2 - \exp(\Omega_a/ku)^2}. \tag{21.8}$$

Cunoscînd valoarea lui $a^{(0)}$ se poate calcula puterea $P(\gamma)$ corespunzătoare unui dezacord $\Omega = \gamma$ din relația

$$P(\gamma) = P_0 \frac{1 + a^{(0)}}{1 + \frac{a^{(0)}}{2}}. \tag{21.9}$$

Cu valoarea lui $P(\gamma)$ se poate determina valoarea $\gamma^{(0)}$, apoi a lui $a^{(1)}$ respectiv $\gamma^{(1)}$ ş.a.m.d. Întrucît corecțiile date de aproximațiile superioare sînt limitate de acuratețea experiențelor, pentru determinarea lărgimii liniei se folosește de obicei aproximația de ordinul întîi.

Pentru investigarea experimentală a formei „Lamb-dip"-ului în vederea obținerii unei precizii cît mai înalte trebuie prevenite instabilitățile curentului de descărcare, trebuie redusă la minim influența vibrațiilor și de asemenea trebuie obținută o dependență liniară a frecvenței de lungimea cavității fără ca să fie afectată calitatea cavității.

Metoda absorbției neliniare poate fi folosită pentru celule de absorbție plasate atît în interiorul cavității, cît și în exteriorul său. În cazul absorbției slabe, plasarea celulei în interiorul cavității dă rezultate mult mai bune.

În figura 21.5 este prezentată instalația experimentală folosită pentru investigarea saturării absorbției într-o celulă cu absorbant He—Ne plasată în exteriorul cavității într-un cîmp magnetic, cu ajutorul unei radiații de probare care se propagă în sens opus celei de pompaj provenită de la un laser cu He—Ne.

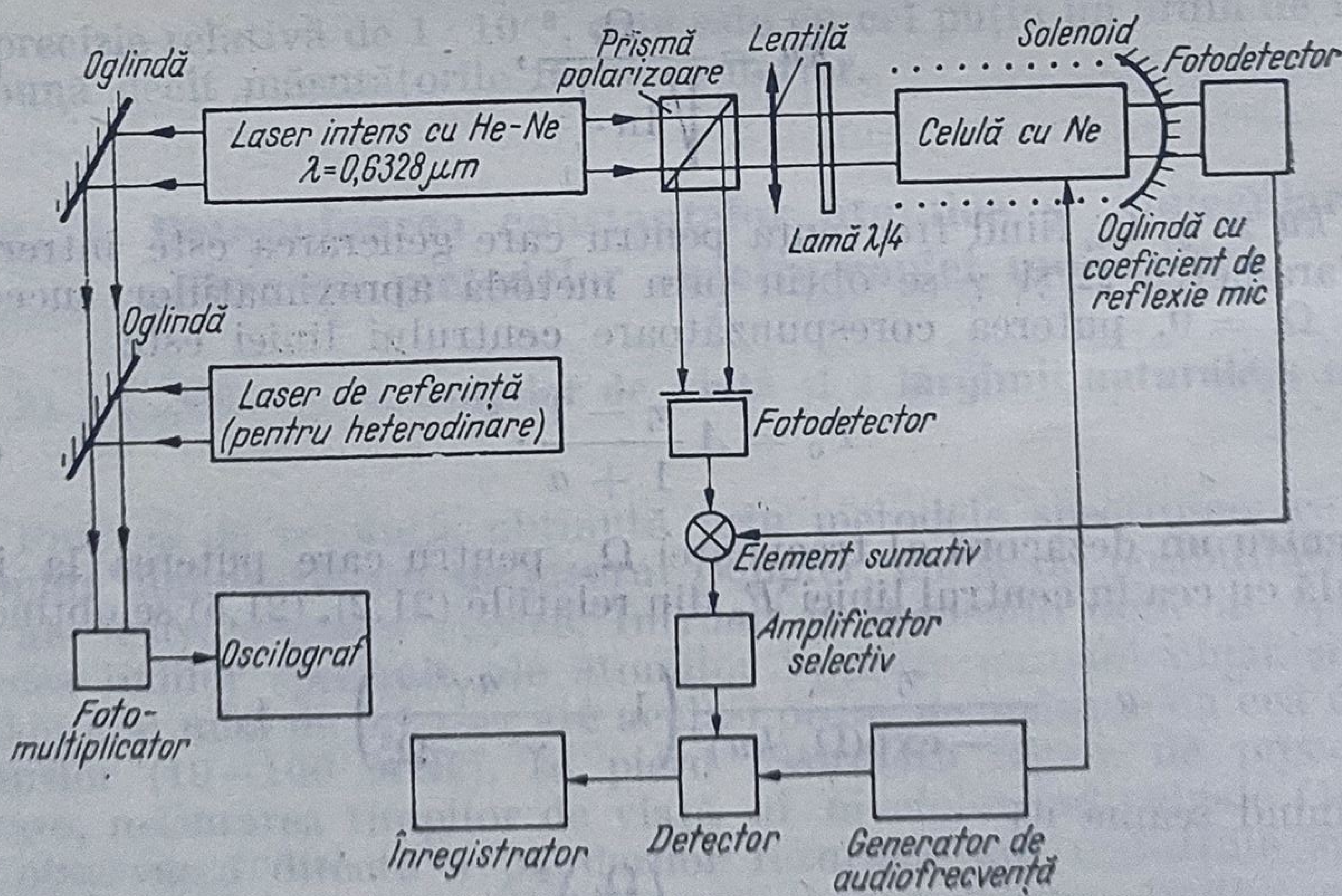


Fig. 21.5

În urma acordării frecvenței laserului se pot obține curbele de absorbție a radiației de probare (fig. 21.6, a), precum și a celei de dispersie (fig. 21.6, b).

Ecartul de frecvență $2\Delta\Omega$ (fig. 21.6, b) este $\frac{\Delta\omega}{\sqrt{3}}$, unde $\Delta\omega$ este lărgimea „dip"-ului obținut în absorbția neliniară.

De asemenea, mai poate fi măsurat coeficientul absorbției saturate pentru o singură trecere a radiației de pompaj prin celulă, K, precum și a

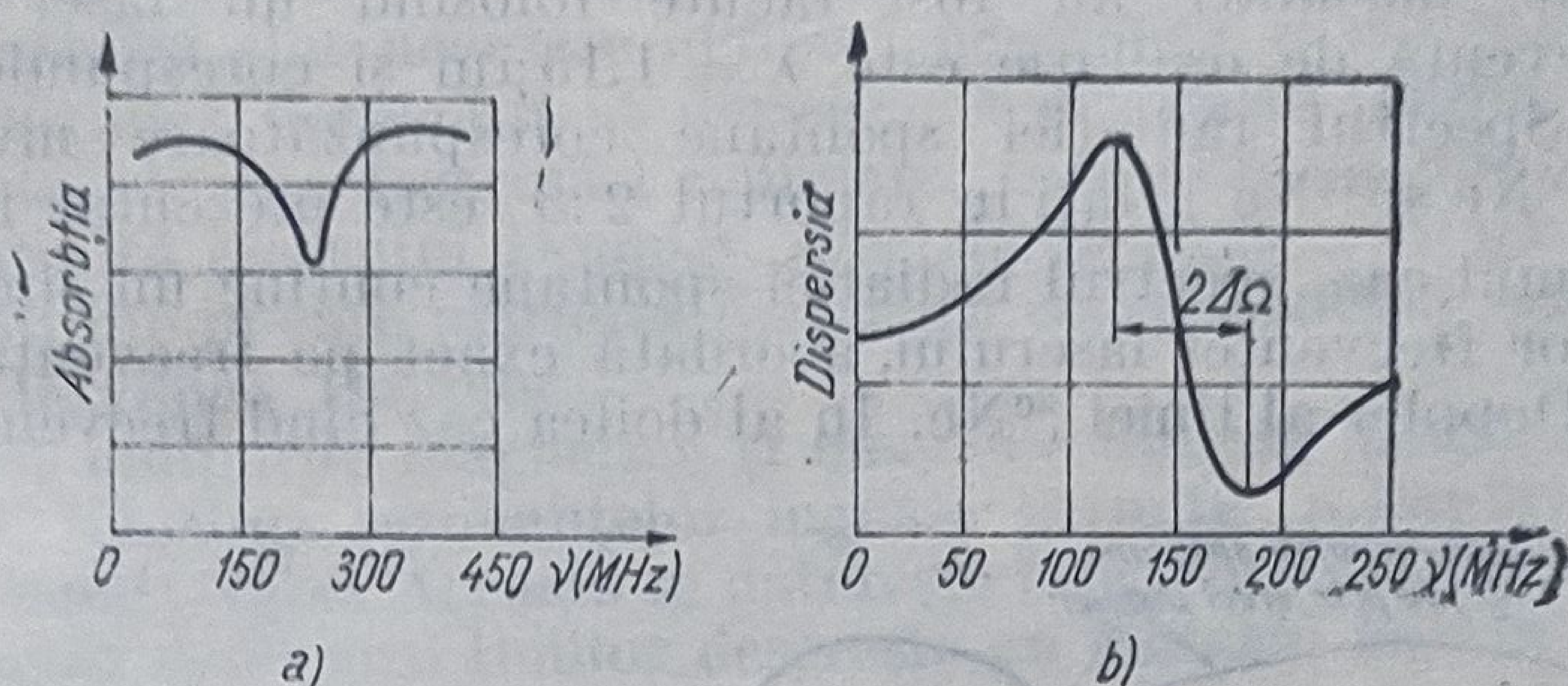


Fig. 21,6

celei nesaturate corespunzător radiației de probare K_0, care permit determinarea parametrului de saturație G din relația (cap. 17)

$$K = \frac{K_0}{\sqrt{1+G}}. \tag{21.10}$$

Dacă nu se posedă nici o informație în legătură cu timpii de viață ai nivelelor, prin experiențe nu prea complicate, bazate pe schimbarea relativă a populațiilor nivelelor sub acțiunea unui cîmp, se poate determina raportul timpilor de viață ai nivelelor.

Raportul variațiilor populațiilor nivelelor Δn_1 și Δn_2 sub acțiunea unei radiații este egal cu raportul timpilor de viață corespunzători nivelelor respective

$$\frac{\Delta n_1}{\Delta n_2} = \frac{\tau_1}{\tau_2}. \tag{21.11}$$

Variațiile suferite de populații sînt legate de schimbarea intensității radiațiilor spontane prin relația

$$\frac{\Delta I_1}{\Delta I_2} = \frac{\tau_1}{\tau_2} \cdot \frac{A_1\omega_{01}}{A_2\omega_{02}} \tag{21.12}$$

unde A_1 și A_2 sînt probabilitățile tranzițiilor spontane corespunzătoare nivelelor, iar ω_{01}/ω_{02} este raportul frecvențelor tranzițiilor. Raportul A_1/A_2 poate fi măsurat în anumite condiții în care cîștigul este zero. În acest caz raportul intensităților absolute ale liniilor este egal cu cel al probabilităților de tranziție A_1/A_2, rezultînd astfel raportul τ_1/τ_2.

Folosindu-se această tehnică, au fost determinate probabilitățile de tranziție corespunzătoare tranzițiilor $3s_2 - 2p_4$ ($\lambda = 0{,}63$ μm) și $2p_4 - 1s_4$ ($\lambda = 0{,}60$ μm) pentru Ne [161].

21.3.2. Investigarea structurii nivelelor. Structura izotopică

Odată cu apariția și dezvoltarea laserilor acordabili s-a creat posibilitatea investigării prin metodele spectroscopiei neliniare a structurii liniilor de absorbție mascate de efectul Doppler.

Primele măsurări au fost făcute folosind un laser cu He-Ne a cărui frecvență de oscilație este $\lambda = 1,15\,\mu m$ și corespunde tranziției $2p_4 - 2s_2$. Spectrul radiației spontane corespunzătoare nivelului $2p_4$ al izotpilor ^{20}Ne și ^{22}Ne aflați în raportul 2 :3 este prezentat în fig. 21.7.

În primul caz, spectrul radiației spontane conține un singur maxim corespunzător frecvenței laserului, acordată exact pe frecvența centrului conturului Doppler al liniei ^{20}Ne. În al doilea caz cînd frecvența laserului

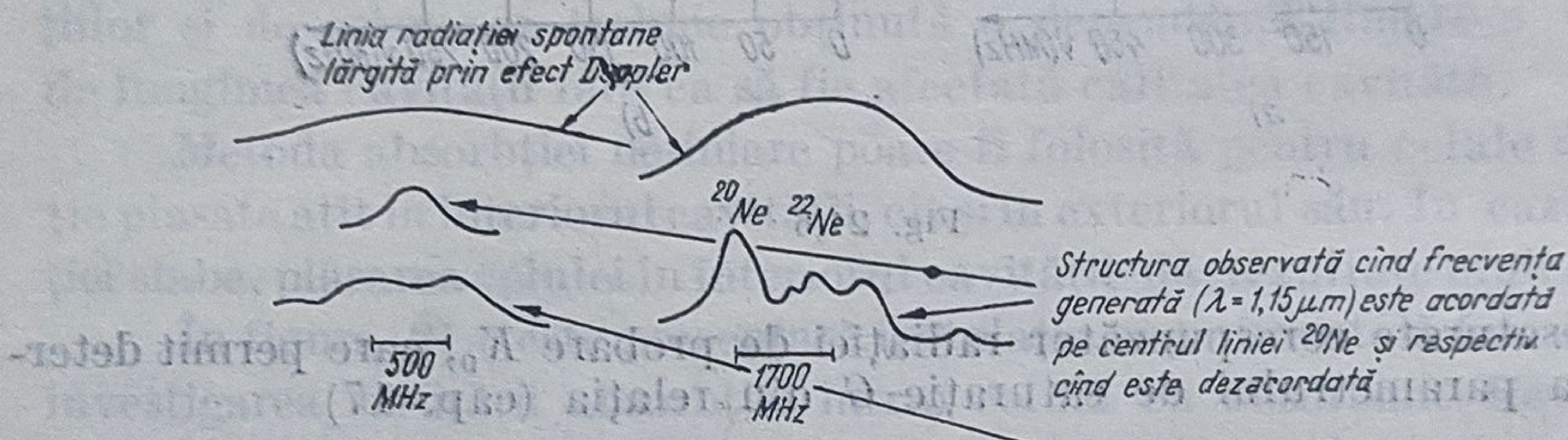


Fig. 21.7

nu mai este acordată pe centrul liniei se obțin două maxime determinate de acțiunea cîmpului undelor staționare asupra tranzițiilor cuplate care modifică distribuția după viteze a atomilor de ^{20}Ne pe nivelul $2p_4$ (fig. 21.7). Cînd frecvența laserului care conține un amestec de izotopi este acordată pe centrul liniei izotopului ^{20}Ne, spectrul radiației spontane conține trei maxime : unul datorită ^{20}Ne nedeplasat și alte două datorită ^{22}Ne (fig. 21.7).

Întrucît centrul liniei pentru ^{22}Ne se află la mijlocul distanței dintre celelalte două maxime se poate măsura deplasarea izotopică a liniilor ^{20}Ne și ^{22}Ne pentru linia cu $\lambda = 6096$ Å. Valoarea acestei deplasări este de 1706 ± 30 MHz, iar pentru linia 1,15 μm deplasarea este de $257 \pm \pm 8$ MHz frecvența izotopului ^{20}Ne fiind deplasată spre roșu.

Cu ajutorul radiației de pompaj provenită de la un laser cu He-Ne ($\lambda = 1,15\ \mu m$) de mare putere, focalizată pe o celulă cu gaz la presiunea de 0,1 torr plasată în exteriorul cavității, a fost determinată structura hiperfină a nivelelor $1s_4$, $2p_4$ și $2s_2$ ale izotopului ^{21}Ne (fig. 21.8)

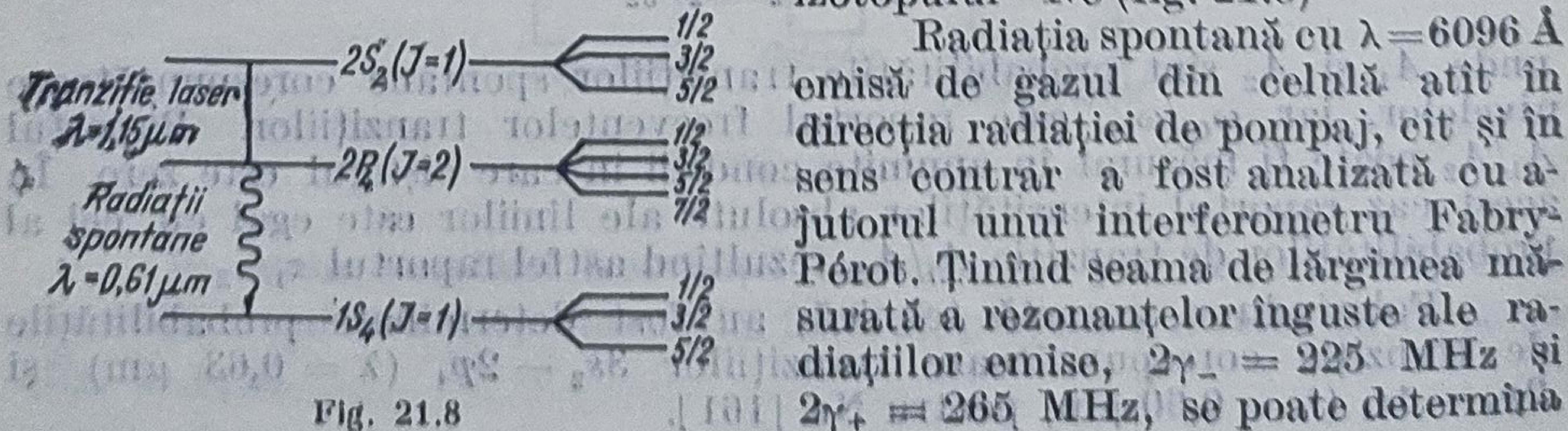


Fig. 21.8

Radiația spontană cu $\lambda = 6096$ Å emisă de gazul din celulă atît în direcția radiației de pompaj, cît și în sens contrar a fost analizată cu ajutorul unui interferometru Fabry-Pérot. Ținînd seama de lărgimea măsurată a rezonanțelor înguste ale radiațiilor emise, $2\gamma_- = 225$ MHz și $2\gamma_+ = 265$ MHz, se poate determina

momentul de cuadrupol al nucleului izotopului ^{21}Ne, $Q=+0{,}1029\pm$ $\pm\,0{,}0075$ barn care este în bună concordanță cu valoarea calculată teoretic [161].

21.3.3. Studiul efectelor Zeeman și Stark

Pentru a pune în evidență efectele Zeeman și Stark în domeniul optic al spectrului sînt necesare cîmpuri magnetice și electrice puternice pentru ca mărimea despicării să depășească cel puțin lărgimea Doppler. Folosind metodele spectroscopiei neliniare, care elimină lărgimea liniilor spectrale datorită efectului Doppler, efectele Zeeman și Stark pot fi studiate în condițiile în care mărimea despicării componentelor este mult mai mică decît lărgimea Doppler.

Întrucît cîmpurile magnetice și electrice intense modifică frecvența de tranziție, folosirea rezonanțelor înguste permite măsurări mult mai precise în cîmpuri slabe. Aceasta se datorește faptului că mărimea cîmpului exterior necesar deplasării liniilor descrește cu factorul ku/γ în comparație cu spectroscopia liniară.

Despicarea Zeeman a nivelelor atomilor de Xe dintr-o celulă situată în exteriorul cavității, de exemplu, [161] poate fi măsurată și prin metodele folosite în spectroscopia tranzițiilor cuplate (cap. 17). Astfel, utilizînd pentru excitare două radiații corespunzătoare la două moduri axiale ale unui laser cu Xe, între care diferența frecvențelor este Δ, se observă o rezonanță neliniară cînd diferența Δ este egală cu diferența frecvențelor $\omega_1 - \omega_2$ între două subnivele ale Xe, indusă de cîmpul magnetic exterior (fig. 21.9).

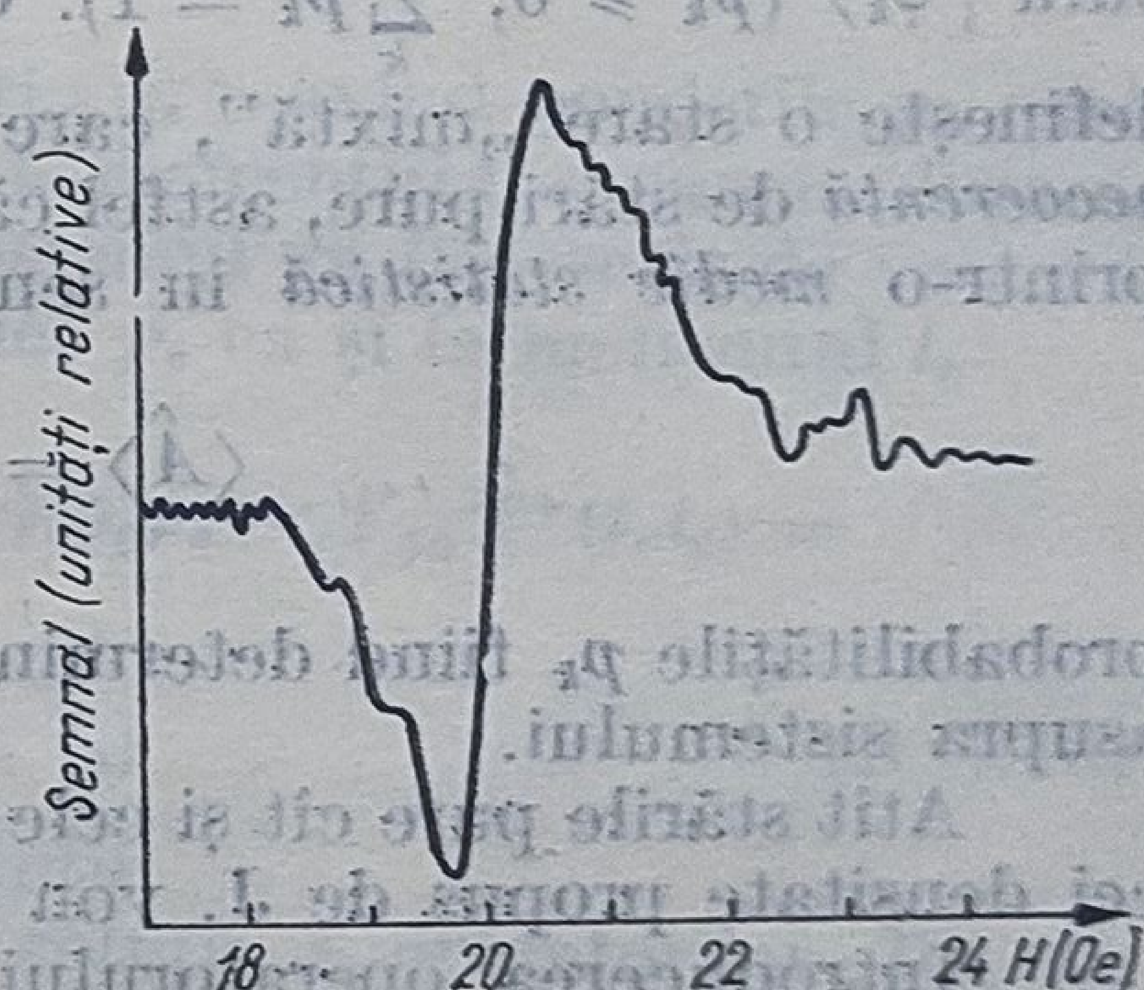


Fig. 21.9

Lărgimea semnalului la rezonanță este $\gamma = 0{,}6$ MHz, fiind cu cîteva ordine de mărime mai mică decît lărgimea Doppler întrucît este determinată numai de lărgimile finite ale nivelelor implicate.

ANEXE

A1. MATRICEA DENSITATE

Pe lîngă stările pure, în studiul sistemelor cuantice intervin în cazul general și stări mixte sau amestecuri de stări. Stările mixte implică absența posibilității unor măsurări maximale asupra sistemelor cuantice, astfel că informația noastră asupra acestora este incompletă.

De exemplu, pentru un ansamblu de N sisteme cuantice ($N \to \infty$) ale căror stări pure $| \psi_i \rangle$ nu sînt cunoscute cu precizie, singura informație posibilă despre un anumit sistem este probabilitatea p_k de a fi în starea pură $| \psi_k \rangle$ ($p_k \geq 0$, $\sum_k p_k = 1$). Ca urmare, pentru sistemul considerat se definește o stare „mixtă'', care se poate reprezenta printr-o *superpoziție necoerentă* de stări pure, astfel că valoarea medie a unui operator se obține printr-o *medie statistică* în sens clasic

$$\langle \hat{A} \rangle = \sum_k p_k \langle \psi_k | \hat{A} | \psi_k \rangle \tag{A 1.1}$$

probabilitățile p_k fiind determinate, de asemenea, prin măsurări efectuate asupra sistemului.

Atît stările pure cît și cele mixte pot fi tratate cu formalismul matricei densitate propus de J. von Neumann.

Introducerea operatorului densitate se poate face scriind expresia (A 1.1) a valorii medii a unui operator $\hat{A}$ cu ajutorul operatorului identitate

$$\sum_n | u_n \rangle \langle u_n | = \hat{I} \tag{A 1.2}$$

astfel

$$\langle \hat{A} \rangle = \sum_n p_n \langle \psi_n | \hat{A} | u_k \rangle \langle u_k | \psi_n \rangle = \tag{A 1.3}$$

$$= \sum_k p_n \langle u_k | \psi_n \rangle \langle \psi_n | \hat{A} | u_k \rangle = \sum_k \langle u_k | \hat{\rho} \hat{A} | u_k \rangle,$$

unde prin definiție

$$\hat{\rho} = \sum_n p_n | \psi_n \rangle \langle \psi_n | \tag{A 1.4}$$

reprezintă *operatorul densitate*. Relația de calcul a valorii medii (A 1.3) scrisă sub forma

$$\langle A \rangle = \text{Urm}\,(\hat{\rho} \hat{A}) \tag{A 1.5}$$

reprezintă o altă definiție echivalentă a operatorului densitate. Pentru o stare pură operatorul densitate degenerează într-un operator de proiecție.

Operatorul $\hat{\rho}$ este hermitic

$$\langle \psi_1 | \hat{\rho} | \psi_2 \rangle = \langle \psi_2 | \hat{\rho} | \psi_1 \rangle^* \qquad (A\ 1.6)$$

și este normat la unitate

$$\mathrm{Urm}\,(\hat{\rho}) = 1\,; \qquad (A\ 1.7)$$

dacă

$$\mathrm{Urm}\,(\hat{\rho}^2) = 1, \text{ starea este pură.} \qquad (A\ 1.8)$$

În ultimul caz $(\hat{\rho}^2)_{nm} = \rho_{mn}$; matricea densitate pentru starea pură este diagonală avînd o singură valoare proprie egală cu unitatea, celelalte fiind nule; elementele diagonale ale matricei densitate $\hat{\rho}$ reprezintă probabilitățile ca un sistem din ansamblu să fie caracterizat de stările proprii $|u_n\rangle$; întrucît $\hat{\rho}$ este atît un „înlocuitor'' al vectorilor de stare cît și observabilă (este hermitic, pozitiv definit, avînd urma finită), schimbarea reprezentării se face după regula cunoscută

$$\hat{\rho}' = \hat{U}^{-1}\,\hat{\rho}\,\hat{U} \qquad (A\ 1.9)$$

unde $\hat{U}$ este un operator unitar.

Dacă se consideră un amestec de stări $|\psi_n\rangle$ avînd ponderile p_n care caracterizează starea dinamică a sistemului la momentul t_0 și care evoluează în timp, înseamnă că la momentul $t > t_0$ sistemul va fi descris de vectorii de stare $|\psi_n\rangle_t$, cu aceleași ponderi statistice p_n ca și la momentul t_0

$$\hat{\rho}_t = \sum_n |\psi_n\rangle_t\, p_n \langle \psi_n|_t = \sum_n \hat{T}(t, t_0)|\psi_n\rangle_0 p_n \langle \Psi_n|_0 \hat{T}^+(t, t_0) =$$

$$= \hat{T}(t, t_0)\; \hat{\rho}_0 \hat{T}^+(t, t_0) \qquad (A\ 1.10)$$

unde $\hat{T}(t, t_0)$ este operatorul unitar de evoluție.

Dacă se ține seama de ecuația de evoluție a operatorilor $\hat{T}(t, t_0)$ și $\hat{T}^+(t, t_0)$ rezultă

$$i\hbar \frac{d\hat{\rho}}{dt} = [\hat{H}, \hat{\rho}] \qquad (A\ 1.11)$$

numită *ecuația Schrödinger pentru operatorul densitate*, care formal se identifică, pînă la semnul comutatorului, cu ecuația Heisenberg pentru operatori.

De exemplu, în teoria semicuantică a laserilor, ecuațiile de polarizare și de populații se obțin utilizîndu-se ecuațiile de mișcare pentru elementele de matrice ale operatorului densitate, datorită relației

$$\langle \hat{A} \rangle = \mathrm{Urm}\,[\hat{\rho}\,\hat{A}] \qquad (A\ 1.12).$$

obținută din (A 1.5) pentru operatorii care nu sînt funcții explicite de timp

A2. CUANTIFICAREA CÎMPURILOR

Cuantificarea cîmpurilor utilizează tipuri noi de operatori cuantici, cum sînt operatorii *de creare* (emisie), *de anihilare* (absorbție) sau *operatorul* $\hat{N}$ al numărului de particule ale cîmpului.

Utilizîndu-se relațiile de comutare ($A2.6$) se poate scrie

$$\hat{a}_k^+ \hat{N}_k |\Phi\rangle = \hat{a}^+ (\hat{a}_k \hat{a}_k^+ - 1) |\Phi\rangle \quad (A\ 2.10)$$

sau

$$\hat{N}_k(\hat{a}_k^+ |\Phi\rangle) = (n_k + 1)(\hat{a}_k^+ |\Phi\rangle) \quad (A\ 2.11)$$

și analog

$$\hat{N}_k(\hat{a}_k |\Phi\rangle) = (n_k - 1)(\hat{a}_k |\Phi\rangle). \quad (A\ 2.12)$$

Prin urmare, dacă $|\Phi\rangle$ corespunde valorii proprii n_k, $\hat{a}^+ |\Phi\rangle$ corespunde valorii proprii $(n_k + 1)$, iar $\hat{a}_k |\Phi\rangle$ valorii proprii $(n_k - 1)$. Dacă se notează cu $|\Phi_0\rangle$ vectorul de stare corespunzător valorii proprii $n_k = 0$, conform ecuației $N_k |\Phi_0\rangle = 0$, prin aplicarea repetată a operatorului $\hat{a}_k^+$ vectorului de stare $|\Phi_0\rangle$ se obține spectrul vectorilor proprii $|\Phi_s\rangle$. Conform cu ($A2.11$), spectrul valorilor proprii n_k ale ecuației ($A2.8$) va fi format din numerele întregi nenegative: $0, 1, 2, \ldots, s$. Se constată că operatorii $\hat{N}_k$ corespunzători operatorilor $\hat{a}_k$ satisfac relațiile de comutare

$$[\hat{N}_k, \hat{N}_l] = 0 \quad (A\ 2.13)$$

deci alcătuiesc un set complet de observabile comutative ale cîmpului. Fie

$$|\Phi_N\rangle = |\Phi_{N_1, N_2, N_3 \ldots N_k \ldots}\rangle = |n_1, n_2, \ldots n_k \ldots\rangle = |n\rangle \quad (A\ 2.14)$$

vectorii proprii comuni ai operatorilor $\hat{N}_k$ astfel că

$$|\Phi_0\rangle = |0, 0, 0, \ldots\rangle \quad (A\ 2.15)$$

Legătura dintre $|\Phi_N\rangle$ și $|\Phi_0\rangle$ este dată de relația

$$|\Phi_N\rangle = \Lambda(\hat{a}_k^+)^{n_1} (\hat{a}_k^+)^{n_2} \ldots (\hat{a}_k^+)^{n_k} \ldots |\Phi_0\rangle, \quad (A\ 2.16)$$

unde Λ este o constantă de normare

$$\Lambda = (n_1!\, n_2! \ldots \hat{n}_k! \ldots)^{1/2}. \quad (A\ 2.17)$$

Operatorii $\hat{N}_k$, deci și $\hat{N}_k$ sînt diagonali. Pentru stabilirea semnificației fizice a operatorilor $\hat{N}_k$, $\hat{a}_k$ și $\hat{a}_k^+$ se evaluează expresia ($A\ 2.3$) scrisă operațional

$$\hat{H} = \sum_k \hat{a}_k^+ \hat{a}_k E_k = \sum_k \hat{N}_k E_k = \sum_k n_k E_k. \quad (A\ 2.18)$$

Rezultă că operatorul

$$\hat{N} = \int \psi^+ \psi \mathrm{d}\tau = \sum_k \hat{N}_k \quad (A\ 2.19)$$

este operatorul „numărului de particule" pentru cîmp și caracterizează starea de excitare a cîmpului de undă. Totodată, conform ecuațiilor

$$\hat{a}_k^+ |n_1, n_2, \ldots n_k \ldots\rangle = \sqrt{n_k + 1}\, |n_1, n_2 \ldots n_{k+1} \ldots\rangle \quad (A\ 2.20)$$

$$\hat{a}_k |n_1, n_2 \ldots n_k \ldots\rangle = \sqrt{n_k}\, |n_1, n_2 \ldots, n_{k-1} \ldots\rangle. \quad (A\ 2.21)$$

A2.1. *Cuantificarea cîmpului de undă*

Pe baza analogiei formale dintre cîmpul de undă Schrödinger ψ și cîmpul electromagnetic descris de vectorii **E** și **B** se poate interpreta ecuația lui Schrödinger ca fiind o ecuație de cîmp, mărimile $\psi(\mathbf{r})$ desemnînd gradele de libertate, în număr infinit, ale cîmpului corespunzător, **r** fiind o variabilă continuă. Notînd $\mathscr{L} = \mathscr{L}(\psi, \text{grad}\, \psi, \dot{\psi}, t)$ densitatea de lagrangeian a cîmpului de undă ψ, lagrangeianul cîmpului este dat de expresia:

$$L = \int \mathscr{L}\ (\psi, \text{grad}\, \psi, \dot{\psi}, t) \mathrm{d}\tau \tag{A 2.1}$$

unde $\mathrm{d}\tau = \mathrm{d}x\, \mathrm{d}y\, \mathrm{d}z$. Impulsul conjugat este

$$\pi(\mathbf{r}, t) = \frac{\partial L}{\partial \dot{\psi}(\mathbf{r}, t)} = \mathrm{i}\hbar\, \psi^*(\mathbf{r}, t) \tag{A 2.2}$$

astfel încît hamiltonianul cîmpului se scrie

$$H(t) = \int \pi(\mathbf{r}, t) \dot{\psi}(\mathbf{r}, t) \mathrm{d}\tau - L. \tag{A 2.3}$$

În vederea cuantificării cîmpului de undă, li se asociază variabilelor canonice $\psi(\mathbf{r})$ și $\pi(\mathbf{r})$ operatori cuantici care acționează în spațiul Hilbert. Este util să se considere dezvoltarea cîmpului de undă ψ în raport cu un set ortonormat de funcții proprii, $u_k(\mathbf{r})$

$$\hat{\psi}(\mathbf{r}, t) = \sum_k \hat{a}_k(t) u_k(\mathbf{r}) \tag{A 2.4}$$

astfel că $\hat{a}_k\ (t)$ reprezintă, de asemenea, operatori. Algebrele operatorilor $\hat{\psi}(\mathbf{r}, t)$ și $\hat{\pi}(\mathbf{r}, t)$ pot fi de comutare sau anticomutare, după cum sistemele cuantice studiate sînt alcătuite din bosoni sau fermioni.

a) *Cuantificarea cîmpului de undă pentru sistemele de bosoni.* Postulatul cuantificării se generalizează pentru operatorii asociați variabilelor canonice ale cîmpului de undă sub forma

$$[\hat{\psi}(\mathbf{r}, t), \hat{\psi}(\mathbf{r}', t)] = [\hat{\pi}\mathbf{r}(, t), \hat{\pi}(\mathbf{r}', t)] = 0. \tag{A 2.5}$$

$$[\hat{\psi}(\mathbf{r}, t), \hat{\pi}(\mathbf{r}', t] = \mathrm{i}\hbar\, \delta(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$$

Ținînd seama de (A2.2) și de (A2.4)

$$[\hat{a}_k, \hat{a}_l] = [\hat{a}^+, \hat{a}_l^+] = 0, \ [\hat{a}_k, \hat{a}_l] = \delta_{kl} \tag{A 2.6}$$

unde $\hat{a}_k^+$ este operatorul conjugat-hermitic al lui $\hat{a}_k$.

Cu ajutorul operatorilor $\hat{a}_k$ și $\hat{a}_k^+$ se poate defini operatorul

$$\hat{N}_k = \hat{a}_k^+ \hat{a}_k \tag{A 2.7}$$

ale cărui valori proprii n_k, date de ecuația

$$\hat{N}_k |\Phi\rangle = n_k |\Phi\rangle, \tag{A 2.8}$$

sînt nenegative

$$n_k = \langle \Phi^+ \hat{a}_k \Phi \rangle = \langle \hat{a}_k \Phi | \hat{a}_k \Phi \rangle \geqslant 0. \tag{A 2.9}$$

Operatorii $\hat{a}_k^+$ şi $\hat{a}_k$ pot fi interpretaţi ca operatori de creare, respectiv de anihilare, ţinîndu-se seama de efectul aplicării lor asupra vectorilor de stare $|\Phi_N\rangle$.

Întrucît numerele de particule în stările $|u_k\rangle$ sînt arbitrare, rezultă că formalismul cîmpului de undă dezvoltat mai sus descrie sistemele de *bosoni*.

Vectorii de stare $|\Phi_k\rangle$ sînt vectori de stare ai cîmpului care joacă rolul funcţiilor de undă, fiind exprimabili prin funcţionale în raport cu numerele de particule n_k. Dacă se construiesc stările

$$|\psi_F(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots \mathbf{r}_s)\rangle = \frac{1}{\sqrt{s!}} \psi^+(\mathbf{r}_1, t)\psi^+(\mathbf{r}_2, t) \dots \psi^+(\mathbf{r}_s, t)|\Phi_0\rangle \qquad (A\ 2.22)$$

numite „stări Fock'', pe baza relaţiilor de comutare şi a dezvoltării (A 2.4) se poate arăta că

$$N|\psi_F\rangle = s|\psi_F\rangle \qquad (A\ 2.23)$$

adică $|\psi_F\rangle$ descrie starea cîmpului de undă cuantificat, cu s particule localizate în punctele $\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots \mathbf{r}_s$. Spaţiul subîntins de stările Fock ortonormate se numeşte *spaţiul Fock*.

Reprezentarea particulară utilizată mai sus, în care operatorii comutativi $\hat{N}$ şi $\hat{N}_k$ sînt diagonali, se numeşte *reprezentarea N* şi prezintă un interes deosebit în teoria cuantică a cîmpului.

Ecuaţia de mişcare pentru o observabilă cuantică $\hat{A}$, împreună cu hamiltonianul cîmpului de undă cuantificat (A 2.18) şi relaţiile de comutare (A 2.5) alcătuiesc *ecuaţiile cuantice ale cîmpului de undă pentru sistemele de bosoni*.

b) *Cuantificarea cîmpului de undă pentru sistemele de fermioni*. Întrucît sistemele de fermioni ascultă de principiul de excluziune al lui Pauli, teoria dezvoltată mai sus pentru sistemele de bosoni trebuie modificată astfel încît să rezulte pentru operatorul numărului de particule $\hat{N}$ numai valorile proprii 0 şi 1, ceea ce se obţine dacă se înlocuiesc relaţiile de comutare cu relaţiile de anticomutare corespunzătoare

$$[\hat{a}_k, \hat{a}_l]_+ = [\hat{a}_k^+ \hat{a}_l^+]_+ = 0, \ [\hat{a}_k, \hat{a}_l^+]_+ = \hat{a}_k\hat{a}_l^+ + \hat{a}_l^+\hat{a}_k = \delta_{kl} \qquad (A\ 2.24)$$

deci

$$\hat{N}_k^2 = \hat{a}_k^+\hat{a}_k\hat{a}_k^+\hat{a}_k = \hat{a}_k^+(1 - \hat{a}_k^+\hat{a}_k)\hat{a}_k = \hat{a}_k^+\hat{a}_k = \hat{N}_k \qquad (1.116)$$

adică

$$n_k^2 = n_k (n_k = 0,1) \qquad (A\ 2.25)$$

astfel că este respectat principiul de excluziune al lui Pauli.

Se constată că ecuaţia de mişcare Heisenberg a operatorilor şi ecuaţia (A2.18) nu sînt afectate de înlocuirea relaţiilor de comutare cu cele de anticomutare pentru operatorii de creare şi anihilare. Spre deosebire de relaţiile de comutare, relaţiile de anticomutare nu au analog clasic. Ca şi în cazul sistemelor de bosoni, se poate construi spaţiul Fock şi pentru sistemele de fermioni, cu condiţia (A2.25).

În cazul sistemelor de fermioni se poate utiliza pentru scrierea ecuaţiilor cuantice ale cîmpului de undă, ecuaţia relativistă a lui Dirac.

K2.2. Cuantificarea cîmpului electromagnetic

Pentru definirea variabilelor canonice ale cîmpului dintr-o incintă cubică de latura L, se consideră descompunerea acestuia în unde plane, de forma

$$\mathbf{E}_k = L^{-3/2} \cdot e^{-i\mathbf{kr}}\, \mathbf{1}_\lambda, \tag{A 2.26}$$

astfel că din condiţiile la limită rezultă $k_\alpha = \frac{2\pi n_\alpha}{L}$ (n = întreg, $\alpha = x,y,z$).

Indicele $\lambda = 1,2$ specifică starea de polarizare a fotonilor din ansamblu, fiind satisfăcută, totodată, condiţia de ortonormare

$$\int_V E_{k\lambda}(\mathbf{r})\, \mathbf{E}_{k'\lambda'}(\mathbf{r}) d\tau = \delta_{kk'}\, \delta_{\lambda\lambda'} \tag{A 2.27}$$

la care se adaugă condiţia de transversalitate a cîmpului ($\mathbf{1}_E \cdot \mathbf{1}_k = 0$.

Cîmpurile electric şi magnetic din incintă au forma

$$\mathbf{E} = \sum_k \sum_\lambda i \left(\frac{\hbar\omega_k}{2\varepsilon L^3}\right)^{1/2} \mathbf{1}_\lambda [\mathbf{b}_{k\lambda}\, e^{i\mathbf{kr}} - \mathbf{b}^*_{k\lambda}\, e^{-i\mathbf{kr}}] \tag{A 2. 28}$$

$$\mathbf{H} = \sum_k \sum_\lambda i \left(\frac{\hbar\omega_k}{2\mu L^3}\right)^{1/2} (\mathbf{1}_k \times \mathbf{1}_\lambda)\, [\mathbf{b}_{k\lambda}\, e^{i\mathbf{kr}} - \mathbf{b}^*_{k\lambda}\, e^{-i\mathbf{kr}}]; \tag{A 2.29}$$

$\mathbf{b}_{k\lambda}$ şi $\mathbf{b}^*_{k\lambda}$ sînt funcţii de timp iar factorii constanţi din paranteză sînt astfel aleşi încît hamiltonianul cîmpului

$$H = \frac{1}{2}\int_V (\varepsilon\, \mathbf{EE} + \mu\, \mathbf{HH})\, d\tau = \frac{1}{2} \sum_k \sum_\lambda (\mathbf{b}_{k\lambda}\mathbf{b}^*_{k\lambda} + \mathbf{b}^*_{k\lambda}\, \mathbf{b}_{k\lambda}) \tag{A 2.30}$$

să se identifice cu energia electromagnetică din incintă.

Notînd :
$$b_{k\lambda} = \frac{1}{\sqrt{2\hbar\omega}} (\omega_k q_{k\lambda} + i p_{k\lambda}) \tag{A 2.31}$$

$$b^*_{k\lambda} = \frac{1}{\sqrt{2\hbar\omega}} (\omega_k q_{k\lambda} - i p_{k\lambda}), \tag{A 2.32)}$$

(A 2.30) se reduce la expresia hamiltonianului oscilatorului armonic liniar

$$H = \frac{1}{2} \sum_k \sum_\lambda (p^2_{k\lambda} + \omega^2_k q^2_{k\lambda}) \tag{A 2.33}$$

astfel că $p_{k\lambda}$ şi $q_{k\lambda}$ pot fi considerate variabilele canonice ale cîmpului electromagnetic.

Trecerea la descrierea cuantică a cîmpului se face asociindu-se mărimilor $b_{b\lambda}$ şi $b^*_{k\lambda}$ operatorii cuantici $\hat{a}_{k\lambda}$, respectiv $\hat{a}^+_{k\lambda}$, astfel că sînt satisfăcute relaţiile de comutare

$$[\hat{a}_{k\lambda},\ \hat{a}^+_{k'\lambda'}] = \delta_{kk'}\delta_{\lambda\lambda'} \tag{A 2.34}$$

$$[\hat{q}_{k\lambda},\ \hat{p}_{k'\lambda'}] = i\hbar\, \delta_{kk'}\, \delta_{\lambda\lambda'}. \tag{A 2.35}$$

Operatorii $\hat{a}^{+}_{k\lambda}$ și $\hat{a}_{k\lambda}$ pot fi interpretați ca operatori de creare și anihilare ai cîmpului cuantificat, avînd hamiltonianul

$$\hat{H} = \sum_{k} \sum_{\lambda} \hbar\omega_k \left(\hat{a}^{+}_{k\lambda} \hat{a}_{k\lambda} + \frac{1}{2}\right). \qquad (A\ 2.36)$$

Trecerea la cuantificarea cîmpului liber ($L \to \infty$) se face prin schimbarea

$$\frac{1}{\sqrt{L^3}} \sum_{k} \to \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \int d\mathrm{k}. \qquad (A\ 2.37)$$

Notînd cu $|n_{k\lambda}>$ stările proprii ale lui $\hat{H}$, se pot scrie relațiile

$$\hat{H}\,|n_{k\lambda}> = E_n\,|n_{k\lambda}>,\ \hat{H}\hat{a}_k\,|n_{k\lambda}> = (E_n - \hbar\omega)\hat{a}_{k\lambda}\,|n_{k\lambda}>.\ \hat{H}\hat{a}^{+}\,|n_{k\lambda}> = = (E_n + \hbar\omega)\hat{a}^{+}_{k\lambda}\,|n_{k\lambda}> \qquad (A\ 2.38)$$

starea cu energia minimă $|0>$ corespunzînd stării de vid a cîmpului electromagnetic. Din (A 2.36) se obține

$$E = \sum_{k} \sum_{\lambda} \hbar\omega_k \left(n_{k\lambda} + \frac{1}{2}\right). \qquad (A\ 2.39)$$

$n_{k\lambda}$ fiind un întreg. Se observă că starea de vid a cîmpului electromagnetic ($n_{k\lambda} = 0$) corespunde energiei de zero a cîmpului, $E_0 = \frac{1}{2}\hbar\omega$.

Ecuația (A2.39) permite să se introducă conceptul de *foton* sau *cuantă de lumină* conform relațiilor : $\varepsilon = \hbar\omega$ și $\mathbf{p} = \hbar\mathbf{k}$, impulsul cîmpului fiind dat de relația

$$\mathbf{P} = \sum_{k} \sum_{\lambda} \hbar\mathbf{k} \left(n_{k\lambda} + \frac{1}{2}\right). \qquad (A\ 2.40)$$

Stările de polarizare ale fotonilor pot fi analizate prin analogie cu stările de spin ale electronului. Cîmpul electromagnetic cuantificat poate fi astfel privit ca format dintr-un ansamblu de fotoni care, ținîndu-se seama de relațiile de comutare (A 2.34), trebuie să fie bosoni.

A.3. METODA PERTURBAȚIILOR

În cazul celor mai multe probleme de mecanică cuantică, se utilizează pentru studiu metode aproximative. O astfel de metodă este *metoda perturbațiilor*, care este o metodă prin aproximații succesive.

Perturbațiile care intervin în problemele studiate pot fi staționare (independente de timp) sau nestaționare, sistemele analizate putînd fi nedegenerate sau degenerate.

Efectele Zeeman și Stark, radiația undelor electromagnetice, proprietățile optice ale solidelor, fotoemisia și fotoconductivitatea, procesele de difuzie etc. se studiază în teoria cuantică cu ajutorul metodei perturbațiilor.

A3.1. Metoda perturbațiilor staționare

Se consideră un sistem cuantic nedegenerat avînd hamiltonianul

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{W}, \quad (W \ll H_0) \qquad (A\ 3.1)$$

astfel că operatorul hermitic $\hat{W}$ reprezintă o mică perturbație a lui $\hat{H}_0$, independentă de timp.

Trebuie determinate soluțiile aproximative ale ecuației

$$\hat{H}\psi_n = (\hat{H}_0 + \hat{W})\psi_n = E_n\psi_n \qquad (A\ 3.2)$$

atunci cînd se cunosc soluțiile exacte ale ecuației neperturbate

$$\hat{H}_0^{(0)}\psi_n^{(0)} = E_n^{(0)}\psi_n^{(0)}. \qquad (A\ 3.3)$$

Întrucît $W \ll H_0$, ψ_n și E_n diferă puțin de $\psi_n^{(0)}$ și $E_n^{(0)}$ astfel că sînt valabile dezvoltările în serie

$$\psi_n = \psi_n^{(0)} + \psi_n^{(1)} + \psi_n^{(2)} + \ldots \qquad (A\ 3.4)$$

$$E_n = E_n + E_n + E_n + \ldots \qquad (A\ 3.5)$$

unde $\psi_n^{(1)} \ll \psi_n^{(0)}$, $\psi_n^{(2)} \ll \psi_n^{(1)}$ etc. și $E_n^{(1)} \ll E_n^{(0)}$, $E_n^{(2)} \ll E_n^{(0)}$ etc. Se admite, totodată, că seriile (A 3.4) și (A 3.5) sînt rapid convergente astfel că în calcul ne putem limita la primii termeni, cu o aproximație suficient de bună.

Dacă se introduc expresiile lui ψ_n, respectiv E_n, în ecuația (A 3.1) după un calcul simplu rezultă

$$(\hat{H}^{(0)} - E_n^{(0)})\psi_n^{(1)} = (E_n^{(1)} - \hat{W})\psi_n^{(0)} \qquad (A\ 3.6)$$

$$(\hat{H}^{(0)} - E_n^{(0)})\psi_n^{(2)} = (E_n^{(1)} - \hat{W})\psi_n^{(1)} + E_n^{(2)}\psi_n^{(0)} \qquad (A\ 3.7)$$

$$(\hat{H}^{(0)} - E_n^{(0)})\psi_n^{i} = (E_n^{(1)} - \hat{W})\psi_n^{(i-1)} + E_n^{(2)}\psi_n^{(i-2)} + \ldots + E_n^{(i)}\psi^{(0)}. \qquad (A\ 3.8)$$

Aceste ecuații se vor utiliza pentru calculul corecțiilor de diferite ordine ale funcției de undă și ale energiei sistemului perturbat. Pentru aceasta se consideră dezvoltările corecțiilor de diferite ordine $\psi_n^{(i)}$ în raport cu funcțiile proprii ortonormate ψ_k ale hamiltonianului neperturbat

$$\psi_n^{(i)} = \sum_k c_{nk}^{(i)}\psi_k^{(0)} \qquad (A\ 3.9)$$

și se introduc în ecuațiile de mai sus.

În aproximația de ordinul întîi trebuie calculate mărimile $E_n^{(1)}$ și $\psi_n^{(1)}$. După calcule simple rezultă

$$c_{nm}^{(1)}(E_m^{(0)} - E_n^{(0)}) = E_n^{(1)}\delta_{mn} - W_{mn} \qquad (A\ 3.10)$$

unde

$$W_{mn} = \int \psi_m^{(0)*}\hat{W}\psi_n^{(0)}\,d\tau \qquad (A\ 3.11)$$

reprezintă elementul de matrice al perturbației.

Pentru $m = n$ rezultă corecția de ordinul întîi a energiei

$$E_n^{(1)} = W_{nn}. \qquad (A\ 3.12)$$

Pentru $m \neq n$ din (A3.10) se obține

$$c_{nm}^{(1)} = -\frac{W_{mn}}{E_m^{(0)} - E_n^{(0)}} = c_{nm}^{(1)*}. \qquad (A\ 3.13)$$

Determinînd coeficientul $c_{nn}^{(1)}$ $(n = m)$ din condiția ca funcția de undă

$$\psi_n = \psi_n^{(0)} + \psi_n^{(1)} \qquad (A\ 3.14)$$

să fie normată la unitate și neglijînd termenii de ordinul doi se poate considera $c_{nn}^{(1)} = 0$, astfel că $(\psi_n, \psi_n) = |c_{nn}|^2 = 1$, funcția ψ_n fiind determinată pînă la un factor de fază arbitrar. Ca urmare

$$\psi_n^{(1)} = -\sum_m{}' \frac{W_{mn}}{E_m^{(0)} - E_n^{(0)}} \psi^{(0)}; \qquad (A\ 3.15)$$

indicele „prim'' înseamnă sumarea numai a termenilor pentru care $m \neq n$.

În aproximația de ordinul al doilea, studiul se face în mod analog. Se obține

$$c_{nm}^{(2)}(E_m^{(0)} - E_n^{(0)}) = E_n^{(1)} \sum_k{}' c_{nk}^{(1)} \delta_{mk} - \sum_k{}' c_{nk}^{(1)} W_{mk} + E_n^{(2)} \delta_{mn}. \qquad (A\ 3.16)$$

Pentru $m = n$ $(m \neq k)$ rezultă corecția de ordinul al doilea a energiei

$$E_n^{(2)} = -\sum_k{}' \frac{|W_{kn}|^2}{E_k^{(0)} - E_n^{(0)}} \qquad (A\ 3.17)$$

întrucît $W_{nk} W_{kn} = |W_{kn}|^2$. Se observă că dacă $E_n^{(0)}$ este energia stării fundamentale, corecția $E_n^{(2)}$ este negativă întotdeauna. Coeficienții $c_{nm}^{(2)}$ se obțin sub forma

$$c_{nm}^{(2)} = \sum_k{}' \frac{W_{mk} W_{kn}}{(E_m^{(0)} - E_n^{(0)})(E_k^{(0)} - E_n^{(0)})} - \frac{W_{nn} W_{mn}}{(E_m^{(0)} - E_n^{(0)})^2} \qquad (A\ 3.18)$$

și

$$c_{nn}^{(2)} = -\frac{1}{2} \sum_k{}' \frac{W_{nk} W_{kn}}{[E_k^{(0)} - E_n^{(0)}]^2} \qquad (A\ 3.19)$$

astfel încît $\psi_n^{(2)}$ este complet determinată.

Din (A 3.15) rezultă că metoda este aplicabilă dacă elementele de matrice ale operatorului perturbație sînt mici în comparație cu ecartul dintre nivelele energetice, adică

$$|W_{mn}| \ll |E_m^{(0)} - E_n^{(0)}|. \qquad (A\ 3.20)$$

A3.2. Metoda perturbațiilor dependente de timp

Fie un sistem cuantic al cărui hamiltonian este

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{W}(t), \quad (\hat{W}(t) = 0, \text{ pentru } t < 0) \qquad (A\ 3.21)$$

unde operatorul perturbației $\hat{W}(t)$ depinde explicit de timp. Se pune problema determinării funcțiilor de undă ale sistemului perturbat $\psi(\mathbf{r}, t)$.

cînd sînt cunoscute funcţiile de undă staţionare ale sistemului neperturbat $\psi_n^{(0)}$. Pentru astfel de sisteme nu este util calculul corecţiilor pentru valorile proprii ale energiei sistemului neperturbat, întrucît nu există stări perturbate staţionare.

La un moment dat $t > 0$, cînd se presupune că perturbaţia încetează, sistemul aflat iniţial în starea $\psi_n^{(0)}$ se poate găsi cu o probabilitate $P_{nm}(t)$ în altă stare proprie $\psi_m^{(0)}$ a lui $\hat{H}_0$. Rezultă că perturbaţia $\hat{W}(t)$ poate induce *tranziţii* între stările staţionare ale sistemului neperturbat, $P_{nm}(t)$ fiind *probabilităţile de tranziţie* corespunzătoare. Dacă $\psi(\mathbf{r}, t)$ este o soluţie a ecuaţiei lui Schrödinger

$$i\hbar \frac{d}{dt}\psi(\mathbf{r}, t) = (\hat{H}_0 + \hat{W}(t))\psi(\mathbf{r},t) \tag{A 3.22}$$

cu condiţia iniţială

$$\psi(t = 0) = \psi_n^{(0)}, \tag{A 3.23}$$

probabilitatea de tranziţie în starea ψ_m are expresia

$$P_{mn} = |\langle \psi_m^{(0)} | \psi(\mathbf{r}, t)\rangle|^2 \tag{A 3.24}$$

astfel că alegerea reprezentării $\{\psi_n^{(0)}\}$ este potrivită pentru calculul ulterior al probabilităţilor de tranziţie. Fie

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \sum_n c_n(t)\psi_n^{(0)}(\mathbf{r})e^{-\frac{i}{\hbar}E_n t} \tag{A 3.25}$$

forma generală a soluţiei ecuaţiei (*A* 3.22), coeficienţii $c_n(t)$ fiind funcţie de timp. Dacă se introduce (*A* 3.25) în (*A* 3.22) se obţine

$$-\frac{\hbar}{i}\sum_n \frac{dc_n(t)}{dt}\psi_n^{(0)}(\mathbf{r})e^{-\frac{i}{\hbar}E_n t} = \hat{W}\sum_n c_n(t)\psi_n^{(0)}(\mathbf{r})e^{-\frac{i}{\hbar}E_n t} \tag{A 3.26}$$

astfel încît,

$$i\hbar\frac{dc_m(t)}{dt} = \sum_n W_{mn}(t)\, c_m(t) \tag{A 3.27}$$

unde
$$W_{mn}(t) = W_{mn}\, e^{-\frac{i}{\hbar}(-E_n+E_m)t} = W_{mn}e^{i\omega_{mn}t}. \tag{A 3.28}$$

Pentru perturbaţii mici $W \ll H_0$, variaţiile în timp ale coeficienţilor $c_m(t)$ sînt foarte lente ($c_m(t)$ devin constante pentru $W \to 0$). Prin urmare, fără a se face o eroare prea mare, în membrul drept al ecuaţiei (*A* 3.27), se poate considera $c_m(t) = c_m(t_0)$. Se obţine, în final

$$\frac{dc_m(t)}{dt} = -\frac{i}{\hbar}\sum_n W_{mn}(\mathbf{r}, t)c_m(t_0) \tag{A 3.29}$$

astfel că pentru determinarea funcţiei de undă (*A* 3.25) trebuie integrate ecuaţiile (*A* 3.29) cu condiţiile iniţiale corespunzătoare.

Ecuaţiile (*A* 3.27) sînt echivalente ecuaţiei lui Schrödinger, analiza efectuată pînă în această etapă fiind exactă. Conform metodei perturbaţiior

dependente de timp (numită și metoda variației constantelor) trebuie calculate corecțiile de diferite ordine pentru coeficienții $c_m(t)$. În acest scop se consideră dezvoltarea:

$$c_m = c_m^{(0)} + c_m^{(1)} + c_m^{(2)} + \ldots \qquad (A\ 3.30)$$

unde $\qquad c_m^{(1)} \ll c_m^{(0)},\ c_m^{(2)} \ll c_m^{(1)}$ etc.

Dacă se introduc coeficienții (A 3.30) în ecuațiile (A 3.29), după calcule simple rezultă

$$\dot{c}_m^{(0)} = 0$$

$$\dot{c}_m^{(1)} = -\frac{\mathrm{i}}{\hbar} \sum_n W_{mn} c_m^{(0)} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_{mn} t}$$

$$\cdots\cdots\cdots\cdots \qquad (A\ 3.31)$$

$$\dot{c}_m^{(r)} = -\frac{\mathrm{i}}{\hbar} \sum_n W_{mn} c_m^{(r-1)} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_{mn} t}$$

care pot fi integrate succesiv, astfel că se obțin soluțiile perturbate de diferite ordine.

În cazul particular $c_n^{(0)} = 1$ (sistemul neperturbat se află în starea staționară n la momentul $t = 0$), $c_m^{(0)} = 0$ $(m \neq n)$ și a doua ecuație (A 3.31) devine

$$\dot{c}_m^{(1)} = -\frac{\mathrm{i}}{\hbar} W_{mn} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_{mn} t} \qquad (A\ 3.33)$$

astfel că $\qquad c_m^{(1)} = -\frac{\mathrm{i}}{\hbar} \int W_{mn} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_{mn} t} \mathrm{d}t. \qquad (A\ 3.34)$

Dacă la $t = 0$ sistemul se află în starea n, probabiliatea ca la momentul $t > 0$ sistemul să sufere o tranziție în starea m va fi

$$P_{mn} = |c_m(t)|^2 = \frac{1}{\hbar^2} \left| \int_0^{+\infty} W_{mn} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_{mn} t} \mathrm{d}t \right|^2 \qquad (A\ 3.35)$$

unde în primă aproximație $c_m(t) = c_m^{(1)}(t)$.

Studiul efectuat poate fi generalizat și pentru cazul în care tranziția are loc între o stare a spectrului discret și stări ale spectrului continuu.

A.4. PARTICULARITĂȚI ALE PROBLEMEI CU MAI MULȚI ELECTRONI

Interacția coulombiană dintre electroni, neglijată în aproximația unielectronică, este de multe ori de același ordin de mărime cu interacția dintre electroni și rețea, astfel încît în numeroase probleme se impune lua-

rea sa în considerare, deși rezolvarea ecuației lui Schrödinger în acest caz prezintă dificultăți.

În expresia hamiltonianului sistemului $\hat{H}$, interacția coulombiană intervine sub forma unui termen aditiv prin care cei N_e electroni sînt cuplați cîte doi prin forțe coulombiene

$$U_{EE} = \frac{1}{2} \sum_{i,j} \frac{e^2}{r_{ij}} \text{ unde } r_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j| \tag{A 4.1}$$

încît

$$\hat{H} = \sum_i \hat{H}_i + \hat{U}_{EE} \tag{A 4.2}$$

unde $\hat{H}_i$ este hamiltonianul unei particule în aproximația unielectronică.

Ca și în cazul unielectronic, simetria translațională a problemei implică soluții de tip Bloch cu mai multe variabile de forma

$$\psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \ldots) = e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}_1} u(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \ldots) \tag{A 4.3}$$

astfel că $u(\mathbf{r}_1 + \mathbf{R}_n, \mathbf{r}_2 + \mathbf{R}_n, \ldots) = u(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2 \ldots).$ (A 4.4)

În raport cu sistemul centrului de masă

$$\mathbf{r}_c = \frac{1}{N_e} \sum_i \mathbf{r}_i. \tag{A 4.5}$$

Întrucît schimbării $\mathbf{r}_i \to \mathbf{r}_i + \mathbf{R}_n$ îi corespunde schimbarea $\mathbf{r}_c \to \mathbf{r}_c + \mathbf{R}_n$, funcție de undă (*A* 4.3) se scrie sub forma mai simplă

$$\psi(\mathbf{r}_c, \mathbf{r}_{ij}) = e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}_c} u(\mathbf{r}_c, \mathbf{r}_{ij}) \tag{A 4.6}$$

unde $u(\mathbf{r}_c, \mathbf{r}_{ij}) = u(\mathbf{r}_c + \mathbf{R}_n, \mathbf{r}_{ij})$ (A 4.7)

adică în expresia funcției de undă ψ apare variabila suplimentară $\mathbf{r}_{ij}$.

Rezultă că în sistemul centrului de masă sistemul de electroni se comportă ca electronii individuali în aproximația unielectronică.

Dacă se ține seama că electronii sînt fermioni și se neglijează pentru început interacția dintre aceștia, atunci funcția de undă multielectronică (*A* 4.6) se exprimă prin

$$\psi_{(k)} = \frac{1}{\sqrt{N_e!}} \begin{vmatrix} \psi_{k_1}(1) & \psi_{k_1}(2) & \ldots & \psi_{k_1}(N_e) \\ \psi_{k_2}(1) & \psi_{k_2}(2) & \ldots & \psi_{k_2}(N_e) \\ \ldots & \ldots & \ldots & \ldots \\ \vdots & & & \\ \psi_{k_{N_e}}(1) & \psi_{k_{N_e}}(2) & \ldots & \psi_{k_{N_e}}(N_e) \end{vmatrix} \tag{A 4.8}$$

unde argumentele funcțiilor unielectronice $\psi_{k_i}(j)$ specifică atît coordonatele de poziție, cît și pe cele de spin ale particulelor, iar k_i desemnează

ocuparea stărilor prin numerele cuantice ale benzii energetice și de spin, $1/\sqrt{N_e!}$ fiind un factor de normare. Funcțiile de undă ψ_{k_i} sînt antisimetrice și satisfac principiul de excluziune al lui Pauli.

O soluție exactă a problemei cu mai mulți electroni va fi determinată de o combinație liniară de funcții de forma (A 4.8), atunci cînd k desemnează prin valorile sale toate stările de ocupare posibile (deci nu numai pe cele ocupate la un moment dat

$$\psi = \sum_k a_k \psi(k) \tag{A 4.9}$$

coeficienții dezvoltării a_k urmînd a fi determinați.

O descriere echivalentă a *reprezentării în coordonate* de mai sus este posibilă cu ajutorul funcțiilor Wannier. Determinanților (A 4.8) din *descrierea Bloch* le corespund determinanți construiți cu funcții Wannier în descrierea cu *orbitali atomici* (descrierea Wannier).

Sistemele cu mai mulți electroni pot fi descrise și cu ajutorul formalismului *numărului de ocupare* a diferitelor nivele, prin intermediul operatorilor de creare și anihilare. Ca urmare, în locul mișcării particulelor, modificările de stare corespund anihilării acestora de pe anumite nivele și crearea lor pe altele.

Dacă se neglijează interacția dintre electroni, hamiltonianul sistemului are expresia

$$H_0 = \sum_k \hat{a}_k^+ \hat{a}_k E_k \tag{A 4.10}$$

unde $\hat{a}_k$ și $\hat{a}_k^+$ sînt operatorii de anihilare, respectiv de creare de particule, operatorul număr de particule fiind $\hat{N}_k = \hat{a}_k^+ \hat{a}_k$. Dacă se ține seama și de interacția dintre electroni, atunci (A 4.10) capătă forma

$$\hat{H} = \hat{H}_0 - \frac{1}{2} \sum_{kk'k_1k_1'} \hat{a}_k^+ \hat{a}_{k'}^+ \hat{a}_{k_1} \hat{a}_{k_1'} V_{kk'k_1k_1'} \tag{A 4.11}$$

unde

$$V_{kk'k_1k_1'} = \int \psi_k^*(\mathbf{r}) \psi_{k'}^*(\mathbf{r}) \frac{e^2}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \psi_{k_1}(\mathbf{r}) \psi_{k_1'}(\mathbf{r}) \, d\tau \, d\tau'. \tag{A 4.12}$$

Totodată, stările proprii Φ ale sistemului se obțin din stare de vid Φ_0, prin aplicarea repetată a operatorului $\hat{a}_k^+$.

BIBLIOGRAFIE

1. URSU, I., PROHOROV, A.M., (editori), The First International Conference, *Trends in Quantum Electronics*, Bucharest, 30 aug.—11 sept., 1982.
2. URSU, I., PROHOROV, A.M., (editori), Second International Conference, *Trends in Quantum Electronics*, Bucharest, 2—6 sept., 1985.
3. URSU, I., PROHOROV, A.M. (editori), Third International Conference, *Trends in Quantum Electronics*, Bucharest, 29 aug.—3 sept., 1988.
4. URSU, I., PROHOROV, A.M., (editori), *Lasers and Applications*, Proceedings of the International Conference and School, Bucharest, 9—11 sept., 1982.
5. PROHOROV, A.M., URSU, I., (editori), *Trends in Quantum Electronics*, Proc. TQE, Bucharest, 2—6 sept., 1985. Central Institute of Physics, Bucharest, Springer—Berlin—Heidelberg—New York, 1986.
6. * * * — *Progrese în fizică*, Vol. I—X, Lucrările Sesiunilor Anuale de Comunicări ale Institutului Central de Fizică, București, 1978—1988, Tipografia Institutului Central de Fizică, Măgurele — București.
7. URSU, I., PROKHOROV, A.M. (editori), Proc. SPIE, The International Society for Optical Engineering, *Trends in Quantum Electronics-88*, vol. **1033**, 1989, (in print).
8. PROHOROV, A.M., KONOV, V.I., URSU, I., MIHĂILESCU, I.N., *Interacția radiației laser cu metalele*, Editura Academiei, București, 1986.
9. BOWDEN, C.M., HOWGATE, D.W., ROBL, H.K., *Cooperative Effects in Matter and Radiation*, Plenum Press, New York—London, 1977.
10. POPESCU, I.M., *Fizica*, vol. I, II, Editura Didactică și Pedagogică, București, 1982.
11. STERIAN, P.E., STAN, M., *Fizica*, Editura Didactică și Pedagogică, București, 1985.
12. PANTELL, R.H., PUTHOFF, H.E., *Fundamentals of Quantum Electronics*, John Willey, Inc., London, 1969.
13. CHANG, W.S.C., *Principles of Quantum Electronics*, Addison-Wesley Publishing Company, Manlo Park—California—London—Ontario, 1971.
14. ȚIȚEICA, R., POPESCU, I.I., *Fizica generală*, vol. I, II, III, Editura Tehnică, București, 1975.
15. MOISIL, G., *Fizica pentru ingineri*, vol. I, II, Editura Tehnică, București, 1968.
16. YARIV, A., *Quantum Electronics*, John Wiley and Sons., Inc., New York, 1967.
17. STERIAN, P.E., *Transmisia optică a informației*, vol. I, II, Editura Tehnică, București, 1981.
18. BEJU, I. ș.a., *Tehnici de calcul spinorial și tensorial neeuclidian cu aplicații*, Editura Tehnică, București, 1979.
19. HAO BAI LIN, *Chaos*, World Scientific, Singapore, 1984.
20. * * * — Revue Roumaine de Physique, Tome **33**, No. 4—6 (Special Issue) Bucarest, 1988.
21. URSU, I., *Rezonanța electronică de spin*, Editura Academiei R.S.R., București, 1965.
22. LANDAU, L., LIFSIT, E., *Théorie quantique relativiste*, Edition de Moscou, 1974.
23. STERIAN, P.E., *Mecanică relativistă și noțiuni de teoria gravitației*, Editura Tehnică, București, 1979.
24. COURANT, R., HILBERT, D., *Methoden der Mathematishen Physik*, J. Springer, Berlin, 1932.
25. MOSS, I.S. ș.a., *Semiconductor opto-electronics*, John-Wiley and Sons., New York, 1973.
26. URSU, I., VASILIU, V., DOROBANȚU, I.A., DRĂGĂNESCU, V., (editori); *Lasers and Applications*, CIP PRESS, Bucharest, 1985.
27. POPESCU, I.M., CONE, G.F., CRISTESCU, C.P., PREDA, A.M., STERIAN, P.E., TUDORACHE, S.St., LUPAȘCU, A.I., *Aplicații ale laserilor*, Editura Tehnică, București, 1979.
28. STERIAN, P.E., *Fizica sistemelor opto-electronice*, Tipografia Institutului Politehnic București, 1974, 1978.

29. POPESCU, I.M., PREDA, A.M., CRISTESCU, C.P., CONE, G.F., STERIAN, P.E., LUPAŞCU, A.P., *Probleme rezolvate de fizica laserilor*, Editura Tehnică, București, 1975.
30. DRĂGĂNESCU, V., VELCULESCU, V.G., *Prelucrări termice cu laseri*, Editura Academiei R.S.R., București, 1986.
31. CUCUREZEANU, I., *Laseri*, Editura Academiei R.S.R., București, 1968.
32. DUMITRAŞ, D.C., *Laseri cu gaz*, Editura Academiei R.S.R., București, 1982.
33. POPESCU, N.G., OPRAN, N.E., *Laseri. Aplicații*, Editura Militară, București, 1979.
34. VLAD, V.I., *Introducere în holografie*, Editura Academiei R.S.R., București, 1973.
35. KASTALSKI, A, A., Sov. Phys. Semicond. **7**, 635 (1973)
36. McCALL, S. L., HAHN, E. L., Phys. Rev. Letters, **18**, 908 (1967)
37. DUȚU, D.C.A., *Laserul — lumina de mîine*, Editura Albatros, București, 1981.
38. DOICARU, VL., NICULESCU, CL.R., *Laseri cu semiconductori și aplicații*, Editura Tehnică, București, 1978.
39. POPESCU, I.I., IOVA, I., TOADER, E., *Fizica plasmei și aplicații*, Editura Științifică și Enciclopedică, București, 1981.
40. HAKEN, H., *Synergetics*, Springer—Verlag, Berlin—Heidelberg—New York, 1978.
41. POPESCU, I.M., PUŞCAŞ, N.N., STERIAN, P.E., IRIMESCU, D., Rev. Roum. Phys., **31**, 4, 1986.
42. POPESCU, I.M., DUMITRU, M., STERIAN, P.E., CĂRBUNESCU, E., 4 Czechoslovak Conference on Microelectronics and Microsystem, Bratislava 9—11 sept., 1986.
43. PODOLEANU, A.Gh., STERIAN, P.E., The Eleventh International Liquid Crystal Conference — Berkeley, California, june 30—july 4, 1986.
44. STERIAN, P.E., POPESCU, I.M., RANCU, O., PODOLEANU, A.Gh., Conferința Națională de Laseri, Măgurele, București, 20—21 oct., 1987.
45. STERIAN, P.E., Teză de doctorat, București, 1987.
46. STERIAN, P.E., PODOLEANU, A.Gh., DUMITRU, M.A., PUŞCAŞ, N.N., PISCUREANU, M., *Probleme rezolvate de fizică atomică*, Tipografia Institutului Politehnic București, 1985
47. POPESCU, I.M., STERIAN P.E., ŞTEFĂNESCU, E.N., St. Cerc. Fiz., **34**, 10, 1982.
48. SUCIU, P., CUCUREZEANU, I., STERIAN, P., GHIORDĂNESCU, V., Rev. Roum. Phys., **18**, 5, 1973.
49. PODOLEANU, A.Gh., STERIAN, P.E., Brevet de invenție R.S.R. nr. 76955/1982.
50. POPESCU, I.M., DUMITRU, M., STERIAN, P.E., Bul. Inst. Pol. București, **XLVI—XLVII**, 1984—1985.
51. STERIAN, P.E., Bul. Inst. Pol. București, **XLVI—XLVII**, 1984—1985.
52. STERIAN, P.E., Bul. Inst. Pol. București, **XLIV**, Nr. 3, 1982.
53. STERIAN, P.E., *Teoria cuantică în fizică*, vol. I, Institutului Politehnic București, 1981.
54. POPESCU, I.M., PUŞCAŞ, N.N., STERIAN, P.E., International Conference on Photovoltaic and Optoelectronic Processes, 4—7 iulie, Bucharest, 1984.
55. POPESCU, I.M., STERIAN, P.E., PUŞCAŞ, N., Bul. Inst. Pol. București, **XLIV**, 4, 1982.
56. POPESCU, I. M., SOFRON, E.V., STERIAN, P.E., — Proceedings of the Fifth Iranian Conference on Electrical Engineering, **2**, Shiraz, 1975.
57. LENGYEL, B.A., — *Lasers*, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1971.
58. ARNAUD, J.A., *Beam and Fiber Optics*, Academic Press, New York, 1976.
59. AGARBICEANU, I.I., POPESCU, I.M., *Metode optice ale spectroscopiei herțiene*, Editura Academiei R.S.R., București, 1970.
60. BORN, M., WOLF, E., *Principles of Optics*, Pergamon Press, Oxford, 1964.
61. MAITLAND, A., DUNN, M.H., *Laser Physics*, John Wiley & Sons, New York, 1969.
62. ARECHI, F.T., SCHULTZ, E.O., Du BOIS, *Laser Handbook*, North Holland Publ. Co., 1972.
63. NISHIWAKI, A., STERIAN, P.E., HATTORI, S., Wave Electronics, No. 3, 1979.
64. STERIAN, P.E., *Technical Report*, Nagoya University, Japan, may 1976.
65. NISHIWAKI, A., STERIAN, P.E., HATTORI, S., *Conference of Applied Physique*, Tohoku University, Japan, October, 1976.
66. STERIAN, P.E., ALUNGULESI, M., Brevet de invenție R.S.R., nr. 63825/1975.
67. KEYES, R.J. *Optical and Infrared Detectors*, Springer Verlag, Berlin—Heidelberg—New York, 1977.
68. * * * *International Conference on Integrated Optics and Optical Fiber Communications*, july, 18—20, Tokyo, Japan, 1977.
69. BOGDANKEVICI, O. ș.a., *Les Lasers à Semiconducteurs*, Editions Mir, Moscou, 1979.
70. NISHIWAKI, A., ITO, H., STERIAN, P.E., HATTORI, S., *Technical Met. Rep.*, Inst. Electr. Com. Japan, dec., 1976.

71. HEINE, V., *Group Theory in Quantum Mechanics*, Pergamon Press, London, 1960.
72. KANO, Y., WOLF, E., Proc. Phys. Soc., 1273 (1962).
73. GLAUBER, R.J., Phys. Rev. Lett., **10**, 84 (1963).
74. L. MANDEL, Proc. Phys. Soc. (London), **72**, 1037 (1958).
75. FORRESTER, A.T., GUDMUNDSEN, R.A. JOHNSON, P.O., Phys. Rev., **99**, 1691 (1955).
76. PODOLEANU, A.Gh., STERIAN, P.E., *Lucrări experimentale de Electronică cuantică și Transmisia optică a informației*, Tipografia Institutului Politehnic din București, 1987.
77. HAIG, N.D. and SILLITTO, R.M., Phys. Lett, **28** *A*, 63 (1968).
78. PERINA, JAN, *Coherence of Light*, Van Nostrand London—New York—Toronto—Melbourne, 1971.
79. NUSSENZWEIG, H.M., *Introduction to Quantum Optics*, Gordon and Bresch Science Publishers, London—New York—Paris, 1973.
80. HAKEN, H., *Light*, vol. I *(Waves, Photons, Atoms)*, North-Holland, Amsterdam—New York—Oxford, 1981.
81. HAKEN, H., *Light and mater*, Ic, Springer Verlag, Berlin—Heidelberg—New York, 1970.
82. IONESCU-PALLAS, N.I., VELCULESCU, V.G., Rev. Roum. Phys. **9**, 623 (1964).
83. VASILIU, V., St. Cerc. Fiz., **23**, 637 (1971).
84. LAUDON, L., *The Quantum Theory of Light*, Clarendon Press, 1973.
85. BETHE, H.A., Phys. Rev. **72**, 339.
86. LAMB, W.E., Phys. Rev., **13** , *A*., p. 1429 (1962).
87. SCULLY, M.O., LAMB, W.E., Phys. Rev., Vol. **159**, pp. 208—226, july, 10, 1967.
88. SZÖKE, A., DANEU, V., GOLDHAR, J., KURNIT, A.N., Appl. Lett. **15**, 376 (1969); SPILLER, E., J. Appl. Phys., **43**, 1673 (1972); SEIDEL, H., PATENT, U.S., 3610731 (1971)
89. Mc.CALL, L.S., Phys. Rev., *A* , 1515 (1974).
90. BONIFACIO, R., LUGIATO, A.L., Phys. Rev., **A18**, 1129—44 (1978).
91. POPESCU, I.M., STERIAN, P.E., ȘTEFĂNESCU, E.N., Proc. Int. Sch. „LAICS", Romania, p. 328, 1982.
92. STERIAN, P.E., POPESCU, I.M., ȘTEFĂNESCU, E.N., 2 Simp. Nat. Teh., Micr., București, 1981.
93. POPESCU, I.M., STERIAN, P.E., ȘTEFĂNESCU, E.N., Stud. Cerc. Fiz., **34**, 10 (1982)
94. POPESCU, I.M., PODOLEANU, A.Gh., STERIAN, P.E., Rev. Phys. Appl., **18**, p. 313 (1983).
95. POPESCU, I.M., ȘTEFĂNESCU, E.N. STERIAN, P.E., Proc. TQE-85, Springer Verlag, p. 172, 1985.
96. STERIAN, P.E., POPESCU, I.M., ȘTEFĂNESCU, E.N., 3 Simp. Nat. Tehn. Micr., 18—19 nov., București, 1983.
97. ȘTEFĂNESCU, E.N., STERIAN, P.E., POPESCU, I.M., Rev. Roum. Phys., **29**, p. 183 (1984).
98. PODOLEANU, A.GH., STERIAN, P.E., POPESCU, I.M., Rev. Roum. Sci. Tech., **32**, 2, p. 197—203 (1987).
99. POPESCU, I.M., STERIAN, P.E., MĂNĂILĂ, D., PODOLEANU, A.Gh., Rev. Roum. Phys., **27**, No. 6—7, Bucarest, (1982.)
100. AGRAWAL, G.P., CARMICHAEL, H.I., Phys. Rev., A **10**, 2074 (1979).
101. FRANKEN, P.A., HILL, A.E., PETERS, C.W., Phys. Rev. Lett., **7**, 118 (1961).
102. HANNA, D.C., YURATICH, M.A., COTTER, D., *Nonlinear Optics of Free Atems and Molecules*, Springer Verlag Berlin—Heidelberg—New York, 1979.
103. BREWER, R.G., MOORADIAN, A., *Laser Spectroscopy*, Plenum Press, New York—London, 1974.
104. SOROKIN, P.P., WYNNE, J.J., Appl. Phys. Lett., **22**, 342 (1973).
105. HÄNSCH, T.W., SCHAWLOW, A.L., TOSCHEK, P.E., IEEE. J. Quantum Electron. QE-**8**, 802 (1972).
106. TOMOV, I.V., RICHARDSON, M.C., IEEE J. Quantum Electron QE-**12**, 521 (1976).
107. LEVENSON, M.D., BLOEMBERGEN, N., Phys. Rev. B, **10**, 4447 (1974).
108. BUTCHER, P.N., *Nonlinear Optical Phenomena*, Bulletin 200, Engineering Experiment Station, Ohio State University, Columbus—Ohio, 1964.
109. BLOEMBERGEN, N., SHEN, Y.R., Phys. Rev. A, **133**, 37 (1964).
110. ARMSTRONG, J.A., BLOEMBERGEN, N., DUCUING, J., PERSHAN, P.R., Phys. Rev. **127**, 1918 (1962).
111. EICHER, H., I.E.E.E. J. Quantum. Electron. QE-**11**, 121, (1975).

112. MILLES, R.B., HARRIS, S.E., I.E.E.E. J. Quantum. Electron. QE-**9**, 470 (1973).
113. ROTENBERG, M., BIVINS, R., METROPOLIS, N., WOOTAN, J.K., *The Three-j and Six-j Symbols*, Cambridge Mass. M.I.T. Press, 1960.
114. BATES, P.R., DAMGAARD, A., Phil. Trans. Roy Soc. (London), **A 242**, 101 (1949).
115. BEBB, H.B., Phys. Rev. **149**, 25 (1966).
116. ANDERSON, E.M., ZILITIS, V.A., Opt. Spectrosc. **16**, 99 (1964).
117. POPESCU, I.M., PUŞCAŞ, N.N., STERIAN, P.E., BARANOVSKI, I., Rev. Roum. Phys. **5**, 383 (1983).
118. MOORE, C.E., *Atomic Energy Levels*, Washington, D.C. NBS, 1958.
119. WALTHER, H., *Laser Spectroscopy of Atoms and Molecules*, Springer Verlag Berlin—Heidelberg—New York, 1976.
120. LEUNG, K.M., WARD, J.F., ORR, B.J., Phys. Rev. *A*9, 2440 (1974).
121. PEACH, M., Mem. R. Astron. Soc. **71**, 13 (1967).
122. GRISCHOWSCKY, D., LOY, M.M.T., LIAO, P.F., Phys. Rev. *A*.**12**, 2514 (1975).
123. FANO, U., Phys. Rev. *A*2, 353 (1970).
124. ARMSTRONG, J.A., WYNNE, J.J., Phys. Rev. Lett. **33**, 1183 (1975).
125. BLOEMBERGEN, N., *Nonlinear Spectroscopy*, Proc. Int. School of Physics „Enrico Fermi" Course L XIV (North Holland Amsterdam, 1977).
126. WALLS, D.F., HARWEY, J.D., *Laser Physics*, Proceedings of the Second New Zealand Summer School in Laser Physics, 1980, Academic Press, New York—London—Toronto.
127. BASSINI, M., BIRABEN, F., CAGNAC, B., GRYNBERG, G., Opt. Comm. **21**, 263 (1977).
128. WALTHER, H., ROTHE, K.W., *Laser Spectroscopy V*, Springer Verlag Berlin—Heidelberg—New York.
129. HODGSON, R.T., SOROKIN, P.P., WYNNE, J.J., Phys. Rev. Lett. **32**, 343 (1974).
130. YOUNG, J.F., BJORKLUND, G.C., KUNG, A.A., MILLES, R.B., HARRIS, S.E., Phys. Rev. Lett. **27**, 1551 (1971).
131. REINTJES, J., SHE, C.Y., ECKARDT, R., I.E.E.E. J. Quantum. Electron. QE-**14**, 581 (1978).
132. PUELL, H., SPANNER, K., FALKENSTEIN, W., KAISER, W., VIDAL, C.R., Phys. Rev. A, **14**, 2240 (1976).
133. CHARLES, J., RHODES, K., I.E.E.E. J. QE-**17**, 10, (1981).
134. LIAO, P.F., BJORKHOLM, J.E., Phys. Rev. Lett, **34**, 2 (1975).
135. ELGIN, J.N., NEW, G.H.C., J. Phys. B. **11**, 3439 (1978).
136. MOORADIAN, A., JAEGER, T., STOKSETH, P., *Tunable Lasers and Applications*, Springer Series in Optical Sciences, vol. 3, Springer, Berlin—Heidelberg—New York, 1976.
137. KHANIN, YA.I., FAIN, V.M., *Quantum Electronics*, Pergamon Press, 1969.
138. ROTHBERG, L.J., BLOEMBERGEN, N., Phys. Rev A, **30**, 820 (1984).
139. BROSSEL, J., BITTER, F., Phys. Rev. **85**, 308 (1952).
140. BLOOM, D.M., YARDLEY, J.T., YOUNG, J.F., HARRIS, S.E., Appl. Phys. Lett., **2** , 427 (1974).
141. NAKATSUKA, H., OKADA, J., MATSUOKA, M., Journ. Phys. Soc. Japan. **37**, 1406 (1974).
142. MATSUCKA, M., NAKATSUKA, H., OKADA, J., Phys. Rev. *A* **12**, 1062 (1975).
143. ARMSTRONG, L., Jr., FENEUILLE, S., J. Phys. B, Atom. Mol. Phys. **8**, 546 (1975).
144. HERZBERG, G., *Atomic Spectra and Atomic Structure*, Dover Publications, New York, 1944.
145. PETRASKIN, M.I., TRIFONOV, E.D., *Applications of Group Theory in Quantum Mechanics*, MIT Press, Cambridge, 1969.
146. LOUISELL, W.H., *Quantum Statistical Properties of Radiation*, Wiley, New York, 1973.
147. SHIMODA, K., *High-Resolution Laser Spectroscopy*, Springer Verlag, Berlin—Heidelberg—New York, 1976.
148. BLOEMBERGEN, N., PURCELL, E.M., POUND, R.V., Phys. Rev. **7** , 679 (1948).
149. BENNETT, W.R., Jr., Phys. Rev. **126**, 580, 1962; Appl. Optics. Supplt., **1**, 24 (1962).
150. SHIMODA, K., JAVAN, A., J. Appl. Phys. **36**, 718 (1965).
151. FARLANE, R.A., BENNETT, W.R., Jr., LAMB, W.E. Jr., Appl. Phys. Lett., **2**, 189 (1963).
152. Mc DOWELL, R.S., GALBRAITH, H.W., CANTRELL, C.D., NERESON, N.G., HINKLEY, E.D., J. Mol. Spectroscop. **68**, 288 (1977).
153. Mc DOWELL, R.S., GALBRAITH, H.W., Opt. Lett, **2**, 57 (1978).
154. SZÖKE, A., JAVAN, A., Phys. Rev. **14** , 38 (1966).
155. CANTRELL, C.D., FOX, K., Opt. Lett. **2**, 151 (1978).

156. GROZEVA, M., METCHKOV, D.I., MITEV, V.M., PAVLOV, L.I., STAMENOV, K.V. Phys. Lett. A **64**, 41 (1977).
157. BJORKHOLM, J.E., Phys. Rev. **142**, 126 (1966).
158. KLEINMAN, D.A., Phys. Rev. **128**, 1761 (1962).
159. BOGDAN, A.R., DOWER, M.W., BLOEMBERGEN, N., Phys. Rev. A, **25**, 2275 (1981).
160. DRABOVICH, K.N., METCHKOV, D.I., MITEV, V.M., PAVLOV, L.I., STAMENOV, K.V., Opt. Comm. **20**, 350 (1977).
161. LETOKHOV, V.S., CHEBOTAYEV, V.P., *Nonlinear Laser Spectroscopy*, Springer—Verlag, Berlin—Heidelberg—New York, 1977.
162. BAKLANOV, E.V., CHEBOTAYEV, V.P., Zh. Eksp. i Teor. Fiz., **62**, 54 (1972).
163. UEHARA, K., SHIMODA, K., Japan J. Appl. Phys. **10**, 623 (1971).
164. FELDMAN, B.J., FELD, M.S., Phys. Rev. A **1**, 1375 (1970).
165. STENHOLM, S., LAMB, W.E., Jr., Phys. Rev. **181**, 618 (1969).
166. BAKLANOV, E.V., CHEBOTAYEV, V.P., Zh. Eksp. i Teor. Fiz. **60**, 551 (1971).
167. ASHKIN, A., BOYD, G.D., DZIEDZIC, J.M., I.E.E.E. J. Quantum Electron, QE**2**, 109 (1936).
168. WARD, J.F., NEW, G.H.C., Phys. Rev. **185**, 57 (1969).
169. KLEINMAN, D.A., MILLER, R.C., Phys. Rev. **148**, 302 (1966).
170. DIELS, J.C., GEORGES, A.T., Phys. Rev. A, 19, 1589 (1979).
171. BLOEMBERGEN, N., *Nonlinear Optics*, BENJAMIN, W.A., Inc. New York, 1965.
172. BLOEMBERGEN, N., LEVENSON, M.D., *High Resorbution Laser Spectroscopy, "Topics in Applied Physics"*, vol. **13**, Ed. K. Shimoda, Springer—Verlag, Berlin—Heidelberg—New York, 1976.
173. SCHÄFER, F.P., "Topics in Applied Physics", vol. **1**, *Dye Lasers*, Springer, Berlin—Heidelberg—New York, 1973.
174. BIRABEN, F., CAGNAC, B., GRYNBERG, G., Phys. Lett., **32**, 643 (1974).
175. LEVENSON, M.D., BLOEMBERGEN, N., Phys. Rev. Lett., **32**, 645 (1974).
176. BJORKHOLM, J.E., LIAO, P.F., Phys. Rev. Lett., **33**, 128 (1974).
177. LEE, P.H., SKOLNICK, W.L., Appl. Phys. Letters, **10**, 103 (1962).
178. LISITSYN, V.N., CHEBOTAYEV, V.P., Zh. Eksp. i Teor. Fiz., **65**, 419 (1968).
179. FELD, M.S., JAVAN, A., *Fundamental and Applied Laser Physics*, Wiley Interscience Publ. 1973.
180. MATTICK, A.T., SANCHEZ, A., KURNIT, N.A., JAVAN, A., Appl. Phys. Lett., **23**, 675 (1973).
181. BJORKLUND, G.C., I.E.E.E. J. Quantum Electron. QE—**11**, 187 (1975).
182. BETEROV, I.M., CHEBOTAYEV, V.P., Pis'ma Zh. Eksper. i Teor. Fiz. **9**, 216 (1969)
183. HÄNSCH, T., KEIL, R., SCHABERT, A., SCHMELZER, CH., TOSCHEK, P., Z. Physik **226**, 293 (1969).
184. HÄNSCH, T., TOSCHEK, P., Z. Physik, **236**, 213 (1970).
185. BREWER, R.G., Phys. Rev. Letters, **25**, 1639 (1970).
186. TAKAMI, M., SHIMODA, K.S., Japan, J. Appl. Phys. **11**, 1647 (1972).
187. VALLÉE, F.F., F. DE RAIGEMONT, LUKASIK, J., I.E.E.E. J. Quantum Electron, QE **19**, 1331 (1983).
188. FLYNN, G.W., FELD, M.S., FELDMAN, B.J., Bull. Am. Phys. Soc. **12**, 669 (1967).
189. LUNTZ, A.C., BREWER, R.G., FOSTER, K.L., SWALEN, J.D., Phys. Rev. Letters, **23**, 951 (1969).
190. STAPPAERTS, E.A., I.E.E.E. J. QE-**15**, 110 (1979).
191. FELDMAN, B.J., FELD, M.S., Phys. Rev. A **5**, 899 (1972).
192. PRIOR, Y., I.E.E.E. J. Quantum Electron, QE **20**, 37 (1984).
193. POPOVA, T., YA., POPOV, A.K., RAUTIAN, S.G., PORDOVSKY, R.I., Zh. Eksp. i Teor. Phys. **57**, 850 (1969).
194. BALLIAN, R., LIBERMAN, S., *Frontiers in Laser Spectroscopy*, North Holland Publishing Co, Amsterdam, 1976.
195. COHEN-TANNOUDJI, C., Ann. Physique, **7**, 423 (1962).
196. DOITCHEVA, V.L., Optical and Quantum Electronics **10**, 131 (1978).
197. HARRIS, S.E., YOUNG, S.E., GREEN, W.R., FALCONE, R.W., LUKASIK, J., WHISE, J.C., WILLISAN, J.R., WRIGHT, M.D., ZDASINK, G.A., *Laser Spectroscopy V* (ed. de Mc Kellar, Oka, T., Stoicheff, B.P.), Springer Verlag, Berlin—Heidelberg—New York, 1981.
198. HILBING, R., WALLENSTEIN, R., I.E.E.E. J. Quantum Electron QE **19**, 194 (1983).
199. SCHEINGRABER, H., VIDAL, C.R., I.E.E.E. J. Quantul Electron, QE-**19**, 1747 (1983).
200. ECKARDT, R.C., REINTJES, J., I.E.E.E. J. Quantum Electron, QE-**20**, 1178 (1984).
201. URSU, I., DRĂGĂNESCU, V., ISBĂŞESCU, M., ş.a., *Optical and Quantum Electronics* (in print).

202. URSU, I., APOSTOL, ILEANA, BĂRBULESCU, DOINA, MIHĂILESCU, I.N., ş.a., Opt. Commun. **39**, 180 (1981).
203. URSU, I., MIHĂILESCU, I.N., NISTOR, LEONA, TEODORESCU, V.S., PROHOROV, A.M., CHAPLIEV, ş.a., Appl. Phys., **A29**, 209 (1982).
204. URSU, I., APOSTOL, ILEANA, BĂRBULESCU, DOINA, LUPEI, V., MIHĂILESCU, I.N., POPA, A., PROHOROV, A.M., CHAPLIEV, N.I., KONOV, V., Opt. Commun, **44**, 332 (1982).
205. URSU, I., APOSTOL, ILEANA, BĂRBULESCU, DOINA, DINESCU, MARIA, DRĂGĂNESCU, V., MIHĂILESCU, I., Rev. Roum. Phys., **27**, 54 (1982).
206. URSU, I., APOSTOL, ILEANA, BĂRBULESCU, DOINA, ş.a., Appl. Phys. **33**, 1513 (1982).
207. URSU, I., APOSTOL, ILEANA, MIHĂILESCU, N.I., NISTOR, LEONA, TEODORESCU, V.S., PROHOROV, A.M., KONOV, V.I., CHAPLIEV, N.I., Surface Studies with Lasers, Series in Chemical Physics, vol. **33**. Springer Verlag, Berlin—Heidelberg, 1983.
208. URSU, I., ş.a., Applied Physics Letters, **44**, (2), 188 (1984).
209. URSU, I., APOSTOL, ILEANA, DINESCU, MARIA, MIHĂILESCU, I.N., POPA, AL., PROHOROV, A.M., KONOV, V.I., CHAPLIEV, N.I., Applied Physics A **34**, 133 (1981).
210. URSU, I., NISTOR, LEONA, TEODORESCU, V.S., MIHĂILESCU, I.N., ş.a., Proc. SPIE The International Society for Optical Engineering, pag. 398 (1983).
211. URSU, I., ş.a., J. Phys. Lett., **45**, L—737—L—740 (1984).
212. I.F.T.A.R., Secţia Laseri, *Catalog de produse*, Comitetul de Stat pentru Energia Nucleară, Institutul Central de Fizică, Bucureşti, Măgurele, 1981.
213. DRĂGĂNESCU, V., COMANICIU, N., GUŢU, I., FARCAŞ, I., Rev. Roum. Phys., 806 (1974).
214. GUŢU, I., IVANOV, I., ş.a., Rev. Roum. Phys. 351 (1975).
215. DUMITRAŞ, D.C., DUŢU, D.C.A., DRĂGĂNESCU, V., COMANICIU, N., Rev. Roum. Phys., **21**, 275 (1976).
216. DUMITRAŞ, D.C., DUŢU, D.C.A., COMANICIU, N., DRĂGĂNESCU, V., Rev. Roum. Phys., **21**, 559 (1976).
217. AXINTE, C., COMANICIU, N., FARCAŞ, I., GUŢU, I., St. Cerc. Fiz., **29**, 37 (1977).
218. GUŢU, I., COMANICIU, N., DRĂGĂNESCU, V., AXINTE, C., FARCAŞ, I., Rev. Roum. Phys., **23**, 147 (1978).
219. GRIGORIU, C., —St. Cerc. Fiz. **32**, 587 (1980).
220. GUŢU, I., COMANICIU, N., DRĂGĂNESCU, V., AXINTE, C., St. Cerc. Fiz. **32**, 101, (1980).
221. CHIŞ, I., CIURA, AL., DRĂGĂNESCU, V., DRĂGULESCU, GH., GRIGORIU, C., UDREA, ELENA, UDREA, M., VELCULESCU, V.G., Rev. Roum. Phys., **26**, 115, (1981).
222. AXINTE, C., FARCAŞ, I., GUŢU, I., DRĂGĂNESCU, V., St. Cerc. Fiz., **33**, 507, (1981).
223. DRĂGĂNESCU, V., ISBĂŞESCU, M., UDREA, ELENA, VELCULESCU, V.G., Rev. Roum. Phys., **26**, 553, (1981).
224. GUŢU, I., DUMITRAŞ, D.C., MEDIANU, R., COMANICIU, N., DRĂGĂNESCU, V., Rev. Roum. Phys., **27**, 587, (1982).
225. DRĂGĂNESCU, V., AGAFIŢEI, A., APOSTOL, D., ş.a., Rev. Roum. Phys., **27**, 629, (1982).
226. DRĂGĂNESCU, V., St. Cerc. Fiz., **34**, 480, (1982).
227. CIURA, AL., DRĂGĂNESCU, V., GRIGORIU, C., ş.a., Rev. Roum. Phys., **27**, 599, (1982).
228. STEELE, E.L., *Optical Lasers in Electronics*, John Wiley, New York—London—Sydney, 1968.
229. GRIGORIU, C., BRINKSCHULTE, H., Phys., Lett., **42** A, 347, (1973).
230. CHIŞ, I., CIURA, AL., COJOCARU, EVA, GRIGORIU, C., JULEA, T., POPESCU, I.M., VELCULESCU, V.G., St. Cerc. Fiz., **25**, 875, (1973).
231. AGAFIŢEI, A., FENIC, C., ISBĂŞESCU, M., ZIŞU, A., Rev. Roum. Phys., **17**, (1972).
232. DRĂGĂNESCU, V., AXINTE, C., COMANICIU, N., DUŢU, D., St. Cerc., Fiz., **24**, 389, (1972).
233. NEMEŞ, G., VLAD, I. V., Rev. Roum. Phys., **14**, 395 (1969).
234. POPESCU, I.M., ş.a., Third International Conference *"Trends in Quantum Electronics"*, Bucharest, 29 aug.—3 sept. 1988.
235. ABRAHAM, E., SMITH, S. D., Rep: Prog. Phys. Vol. **45** (1982)

236. AXINTE, C., FARCAŞ, I., St. Cerc. Fiz., **33**, 499 (1981).
237. TOMULESCU, R., VELCULESCU, V.G., Rev. Roum. Phys., **22**, 461 (1977).
238. VASILIU, V., MARIŞ, ZINCA, RISTICI, M., St. Cerc. Fiz., **36**, 538 (1984).
239. STERIAN, P.E., RANCU, O., POPESCU, I.M., St. Cerc. Fiz. (În curs de publicare).
240. ALEXANDRESCU, R., COJOCARU, ELENA, VELCULESCU, V.G.,
241. VASILIU, V., *Laserii cu heliu-neon şi aplicaţiile lor*, Editura Ştiinţifică şi Enciclopedică, Bucureşti (1987).
242. GUŢU, I., COMANICIU, N., DRĂGĂNESCU, V., DUMITRAŞ, D., MIHĂILESCU, I.N., ş.a., Rev. Roum. Phys., **27**, 697 (1982).
243. URSU, I., ş.a., Applied Physics Letters, **46**, (2) (1985), 110—112.
244. IONESCU-PALLAS, N.J., VELCULESCU, V.G., Opt. i. Spektrosk. **17**, 1, 139 (1964).
245. POPESCU, G., BLĂNARU, C., St. Cerc. Fiz., **28**, 1, 95 (1976).
246. APOSTOL, D., BLAJ, V., IONESCU, A., RISTICI, M., TUTELEA, S., St. Cerc. Fiz., **26**, 10, 1083 (1974).
247. POPESCU, G., IONESCU, A., MAGHIAR, G., St. Cerc. Fiz., **31**, 6, 669 (1979).
248. VASILIU, V., St. Cerc. Fiz., **23**, 6, 637 (1971).
249. CIURA, A.I., RISTICI, M., VASILIU, V., Rev. Roum. Phys., **23**, 9, 1035 (1978).
250. CIURA, A.I., RISTICI, M., VASILIU, V., St. Cerc. Fiz., **30**, 8, 785 (1978).
251. CIURA, A.I., RISTICI, M., VASILIU, V., St. Cerc. Fiz., **29**, 9, 969 (1977).
252. GUŢU, I., IVANOV, I., Rev. Roum. Phys., **20**, 4, 429 (1975).
253. GUŢU, I., IVANOV, I., MEDIANU, R., GEORGESCU, C., Rev. Roum. Phys., **20**, 4, 351 (1975).
254. CIURA, A.I., COJOCARU, E., POPESCU, I.M., St. Cerc. Fiz., **27**, 607 (1975).
255. CRISTESCU, C.P., POPESCU, I.M., PREDA, A.M., Rev. Roum. Phys., **18**, 7 859 (1973).
256. CRISTESCU, C.P., CONE, GABRIELA, POPESCU, I.M., PREDA, A.M., Rev. Roum. Phys., **21**, 2, 153 (1976).
257. CRISTESCU, C.P., LUPAŞCU, A.I., POPESCU, I.M., PREDA, A.M., Can. J. Phys., **56**, 8, 1071 (1978).
258. CIURA, A.I., POPESCU, I.M., St. Cerc. Fiz., **25**, 8, 897 (1973).
259. AGÂRBICEANU, I.I., CIURA, I., POPESCU, I.M., Rev. Roum. Phys., **1**, 6, 607 (1971).
260. CRISTESCU, C.P., POPESCU, I.M., PREDA, A.M., Rev. Roum. Phys., **22**, (1977).
261. CIURA, A.I., POPESCU, I.M., Rev. Roum. Phys., **18**, 6, 775 (1973).
262. DUMITRAŞ, D.C., St. Cerc. Fiz., **28**, 7, 673 (1976).
263. DUMITRAŞ, D.C., St. Cerc. Fiz., **30**, 7, 671 (1978).
264. DUMITRAŞ, D.C., DUŢU, D.C., COMANICIU, N., DRĂGĂNESCU, V., Rev. Roum. Phys., **21**, 6, 559 (1976).
265. DUMITRAŞ, D.C., St. Cerc. Fiz., **29**‘ 2, 133 (1977).
266. CIURA, A.I., COJOCARU, E., GRIGORIU, C., POPESCU, I.M., VELCULESCU, V.G., Rev. Roum. Phys., **17**, 3, 387 (1972).
267. CHIŞ, I., CIURA, A.I., COJOCARU, E., GRIGORIU, C., JULEA, T., POPESCU, I.M., VELCULESCU, V.G., St. Cerc. Fiz., **25**, 7, 875 (1973).
268. DRĂGULINESCU, D., GRIGORIU, C., NIŢOI, A., POPESCU, I.M., Rev. Roum. Phys., **21**, 7, 665 (1976).
269. APOSTOL, I., DRĂGULINESCU, D., GRIGORIU, C., MIHĂILESCU, I.N., NIŢOI, A., St. Cerc. Fiz., **28**, 2, 181 (1976).
270. APOSTOL, I., DRĂGULINESCU, D., GRIGORIU, C., MIHĂILESCU, I.N., NIŢOI, A., POPESCU, I.M., Rev. Roum. Phys., **18**, 10, 118, 5 (1973).
271. GRIGORIU, C., BRINKSCHULTE, H., Phys. Lett., **42A**, 5, 347 (1973).
272. POPESCU, I.I., BĂDĂRĂU, E., *Gaze ionizate. Procese fundamentale*, Editura Tehnică, Bucureşti, 1963.
273. POPESCU, I., IONESCU, N., Proc. Phys. Soc., **A75**, 807 (1960).
274. POPESCU, D., COLLINS, C.B., JOHNSON, B.W., POPESCU, I.I., Phys. Rev. A, 1182 (1974).
275. TOADER, E.I., COLLINS, C.B., JOHNSON, B.W., MIRZA M.Y., Phys. Rev., **16 A**, 1490 (1979).
276. PASCU, M.L., Laser and Unconventional Optics Journal, EAS-Sweden, **36**, 9—16, (1971)
277. PASCU, M.L., JOHNSON, B.E., Analele Univ. Buc. (Seria Fizică) Anul XXII, 375 (1973).

278. PASCU, M.L., COLLINS, C.B., JOHNSON, B.W., POPESCU, I.I., Phys. Rev., *A8* 4, 1666—1672, (1973).
279. COLLINS, C.B., JOHNSON, B.W., POPESCU, D., PASCU, M.L., MUSA, G., POPESCU, I.I., Phys. Rev. A, **8**, 2197—2201, (1973).
280. PASCU, M.L., Teză de doctorat, Bucureşti, 1974.
281. PASCU, M.L., Studii şi cercetări de fizică, **29**, 4, (1977).
282. PASCU, M.L., CONSTANTINESCU, A., PASCU, A., DUMBRĂVEANU, G., Rev. Roum. Phys., **23**, 6, (1978).
283. PASCU, M.L., PASCU, A., CONSTANTINESCU, A., DUMBRĂVEANU, G., Rev. Roum. Phys., **23**, 10, (1978).
284. PASCU, M.L., CONSTANTINESCU, A., ZUGRAV, M., NĂSTASE, L., DUMBRĂVEANU, G., MUSA, G., Phys., **27**, 6—7, (1982).
285. PASCU, M.L., DANG THI MAI., DUMBRĂVEANU, G., Rev. Roum. Phys., **27** 6—7,, (1982).
286. PASCU M.L., NĂSTASE, L., MUSA, G., Rev. Roum. Phys., **27**, 9, (1982).
287. PASCU, M.L., "Proceedings of the IV International Conference on Luminiscence", 1982, Szeged, Ungaria.
288. PASCU, M.L., Proceedings of the International Conference and School 1982, *Laics*, Bucureşti.
289. PASCU, M.L., NĂSTASE, L., MUSA, G., J. Phys. D., Appl. Phys. **117**, 1149, (1984).
290. VASILIU, V., DOROBANŢU, I.A. *Realizări și perspective în domeniul lacerilor și aplicațiile lor în economia națională* (Lucr. Conf. Nat.), Centrul Naţional de Fizică, Buc., 20—21 oct. 1987.
291. LUPEI, A., LUPEI, V., URSU, I., J. Phys. C, vol. **15**, 5489 (1982).
292. URSU, I., LUPEI, V., LUPEI, A. Rev. Roum. Phys. vol. **23**, p. 673 (1978).
293. GIUCU, C., GEORGESCU, S., LUPEI, V., Rev. Roum. Phys., vol. **26**, p. 169 (1981).
294. URSU, I., LUPEI, V., MÎNZATU, V.I., Int. Conf. and School *Lasers and Applications*, CIP-AP, vol. **2**, p. 393, Bucharest, (1982).
295. LUPEI, V., STOICESCU, C., URSU, I., J. Phys. C., vol. **9**, L317 (1976).
296. GEORGESCU, S., TOTIA, H., DOMŞA, F., LUPEI, V., J. Phys. E, vol. **12**, p. 473, (1979).
297. LUPEI, V., STOICESCU, C., Proc. XIX th Congrèss Ampere, Heidelberg 1976, p. 243.
298. URSU, I., LUPEI, V., *Lasers and Applications*, CIP PRESS Bucharest, 1985,
299. PASCU, M.L., VASILE, AURELIA, ş.a. *Lasers and Applications*, CIP PRESS, Bucharest, 1985,
300. DOROBANŢU, I.A., *Lasers and Applications*, CIP PRESS, Bucharest, 1985, p. 369.
301. GIBBS, H.M., SLUSHER, R.E., Phys. Rev. Letters **24**, 639 (1970).
302. AGRAWAL G.P., Phys. Rev. vol. **30**, No. 2, p. 884, aug., (1984).
303. LYUBAVSKY, YU., OVCHINNIKOV, V., *Solid State Laser Technology*, Mir Publishers, Moscow, 1975.
304. HILBING, R., WALLENSTEIN, R., IEEE J. Quantum Electron, QE **19**, 194, (1983).
305. HARRIS, S.E., McDUFF, O.P., IEEE J. of Quantum Electron., vol. QE-**1**, No. 6, Sept., (1965).
306. McDUFF, O.P., HARRIS, S.E., IEEE J. of Quantum Electron., vol. QE-**3**, No. 3, March (1967).
307. KUZEINGA, D.J., SIEGMAN, A.E., IEEE J. Quantum Electron., vol. QE-**6**, Nov., (1970).
308. KENNEDY, C.J., IEEE J. Quantum Electron., vol. QE-**11**, No. 11, (1975).
309. FONTANA, J.R., IEEE J. Quantum Electr., vol. QE-**8**, No. 8 (1972).
310. HARGROVE, L.E., FORX, R.L., POLLACK, M.A., Appl. Phys., Letters **5**, 4 (1964).
311. HARRIS, S.E., TARG, R., Appl. Phys. Letters **5**, 202 (1964).
312. Di DOMENICO, M.Jr., J. Appl. Phys., vol. **35**, pp. 2870—2876, Oct., (1964).
313. POPESCU, I.M., DUMITRU, M.A., STERIAN, P.E., PODOLEANU, A.G., Rev. Roum. Phys., Tome, **28**, No. 8, pp. 699—704, Bucharest (1983).
314. CĂTUNEANU, V.M., PODOLEANU, A.Gh., STERIAN, P.E., St. Cerc. Fiz., Tom **37**, Nr. 3, pp. 216—221, Bucureşti (1985).
315. PODOLEANU, A.Gh. STERIAN, P.E., POPESCU, I.M., Al cincilea Simpozion de Tehnica Microundelor, Bucureşti 18—19,XII,1987.
316. PODOLEANU, A. Gh., STERIAN, P.EE., POPESCU I. M., POPA, S., Lucrările „CNETAC-84", vol. **3**, Bucuresti, 15 — 17 noiembrie, 1984,
317. PODOLEANU, A. Gh., POPESCU, I. M., STERIAN, P. E., Rev. Phys. Appl. **21**, pp. 277 — 282 (1986).
318. BENNETT, W. R. Jr., Phys. Rev., vol. **126**, pp. 580 — 593, April., (1962).
319. BAMBINI, A., BURLAMACCHI, P., IEEE J. Quantum Electr., vol. E-**4**, pp. 101—102, March (1968).

320. STERIAN, P.E., MĂNĂILĂ, P., POPESCU, I.M., MILLEA, L., Europhysics Conference Abstracts „TQE" Bucharest, 2–6 sept., 1985.
321. POPESCU, I.M., PODOLEANU, A. Gh., DUMITRU, A.M., STERIAN, P.E., St. Cerc. Fiz., Tom **37**, Nr. 3, p. 209–215, București (1985).
322. MOCKER, H.W., COLLINS, R.J., Appl. Phys. Lett., vol. **7**, pp. 270–273, nov. (1965).
323. STOVER, H.L., STEIER, W.H., Appl. Phys. Lett., **8**, 91 (1966).
324. GLENN, W.H., BRIENZA, M.J., De MARIA, A.J., Appl. Phys. Lett., vol. **12**, pp. 54–56, Journal 15 (1968).
325. GIBBS, H.M., Mc. CALL, S.L., VENKATESEN, T.N., Phys. Rev., Lett., **36**, 113 (1976)
326. MEYSTRE, P., Opt. Commun., **26**, 277 (1978).
327. CARMICHAEL, H.I., HERMAN, J.A., Z. Physiks, B **38**, 365 (1980).
328. SANDLE, W.J., GALLAGHER, A., Phys. Rev., A, **24**, 2017 (1981).
329. SMITH, P.W., TURNER, E.H., Appl. Phys. Lett., **30**, 282 (1977).
330. SCHNAPPER, A., PAPUCHON, M., PUECH, C., Opt. Commun., **29**, 364 (1979).
331. GARMIRE, E., MARBURGER, J.H., ALEN, S.D., Appl. Phys. Lett., **32**, 320 (1978)
332. ȘTEFĂNESCU, E.N., STERIAN, P.E., POPESCU, I.M., 2 Simp. Nat. Tehn. Micr. 30–31 oct., București, p. 443 (1981).
333. POPESCU, I.., ȘTEFĂNESCU, E.N., STERIAN, P.E., Bul. Inst. Pol., București, Tom. XLIV, 3, p. 29 (1982).
334. POPESCU, I.M., ȘTEFĂNESCU, E.N., STERIAN, P.E., Rev. Roum. Phys., Tom **19**, No. 2, București, p. 183 (1984).
335. POPESCU, I.M., ȘTEFĂNESCU, E.N., STERIAN, P.E., Rev. Roum. Phys., Tome **31**, No. 3, pp. 221–235, Bucharest (1986).
336. ȘTEFĂNESCU, E.N., STERIAN, P.E., POPESCU, I.M., Int. Conf. TQE, Bucharest, 2–6 sept. 1985.
337. POPESCU, I.M., STERIAN, P.E., MILLEA, L., Int. Conf. TQE, Bucharest, 2–6 sept., 1985.
338. MIHALACHE, D., TOTIA, M., Int. Conf. TQE, Bucharest, 2–6 sept., 1985.
339. POPESCU, I.M., DUMITRU, M.A., STERIAN, P.E., Rev. Roum. Phys., Tome **30**, No. 4, p. 297, Bucharest (1985).
340. PODOLEANU, A.Gh., POPESCU, I.M., STERIAN, P.E., 4 Simp. Nat. Tehn. Micr., 22–24 nov., București, 1985
341. PASCU, M. L., PASCU, A., DUMBRĂVEANU, G., CAPRINI, M., BOZDOG G, H., MUSA, A., CRIȘAN, D., MUNTEANU, M., St. Cercet. Fiz. **37** 6 – 8, 576 (1985)
342. PASCU, M. L., SCHIKETANZ, I., SCHIKETANZ, A., GHEORGHIU, M., VASILE, A., BAI ABAN, A. T., Rev. Roum. Chim., **30**, 11 – 12 (1984)
343. BONIFACIO, R. (editor), *Dissipative Systems in Quantum Optics*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg – New York, 1982
344. PASCU, M. L., PASCU, A., DUMBRĂVRNU, G., CRIȘAN, D., Sci. Instruments, 19 (1986).
345. PASCU, M. L., VASILE, A., DUMITRAS, M., PENG BAI, PASCU, A., DUMBRĂVEANNU, G., Proceedings of the Second International Conference *Trends in Quantum Electronics*, Bucharest, 2–6 sept,. 1985
346. PASCU, M.L., Proceedings of the Second International Conference, *Trends in Quantum Electronics*, 1986, Springer Verlag, Berlin–Heidelberg–New York, 1986.
347. PASCU, M.L., ș.a., Brevet de invenție R.S.R., nr. 73534/1975.
348. POPESCU, I.M., PUȘCAȘ, N.N., STERIAN, P.E., Rev. Roum. Phys., Tome **32**, No. 3, p. 273–277, Bucarest (1987).
349. POPESCU, I.M., PUȘCAȘ, N.N., ȘTERIAN, P.E., PODOLEANU, A.Gh., Proceedings of the *4th* Roumanian Microwave Conference, Bucharest 22–23 Nov. '85.
350. STERIAN, P.E,. PODOLEANU, A.Gh., POPESCU, I.M., MĂNĂILĂ, D., Bul. Inst. Pol. București Seria „Electronică", XLIX, p. 29 (1987).
351. STERIAN, P.E., ȘTEFĂNESCU, E.N., POPESCU, I.M., Bul. Inst. Pol. București seria „Electrotehnică", XLIX, p. 27 (1987).
352. ȘTEFĂNESCU, E.N., STERIAN, P.E., POPESCU, I.M., NICOLESCU, D., Rev. Roum. Phys. Tome **33**, Nr 10, Bucharest (1988).
353. STERIAN, P.E., MILLEA, L., Rev. Roum. Phy. Tome **33**, Nr. 10, Bucharest (1988).
354. STERIAN, P.E., POPESCU, I.M., RANCU, O. Rev. Roum. Phys. (in print)
355. WU, F.Y., GROVE, R.E., EZEKIEL, S., Phys. Rev. Lett., **35**, 1426 (1975).
356. ȘTEFĂNESCU, E.N., STERIAN, P.E., POPESCU, I.M., Rev. Roum. Phys., Tome **31**, No. 4, p. 345–350, Bucarest (1986).

357. PODOLEANU, A.Gh., POPESCU, I.M., STERIAN, P.E., DOICARU, V., NICULESCU, G., Rev. Roum. Phys., **23**, 9, p. 104, (1978).
358. CĂTUNEANU, V.M., BACIVAROF, I., STERIAN, P.E., *Proceedings of the International Conference on Reliability and Maintainability*, Perros Guirec — France, september 1980.
359. SOFRON, E.V., STERIAN, P.E., TEODORESCU, H.N., Le 7-ème Congrès International sur les Cristaux Liquides, 1—5 juillet, Bordeaux, France, 1978.
360. PODOLEANU, A.Gh., STERIAN, P.E., POPESCU, I.M., Rev. Roum. Sci. Techn., **33**, 3 (1988).
361. POPESCU, A., MUSA, G., Phys. Lett. A, **53** *A*, 4 (1975).
362. COLLINS, C.B., JOHNSON B.W., MÎRZA, M.Y., POPESCU, D., POPESCU, I., Phys. Rev. A, **10**, 3, 813—814, 1974.
363. POPESCU, A., NUCLESCU, N.D., Rev. Roum. Phys., **19**, 5 (1974).
364. POPESCU, D., POPESCU, I., MAURER, J., COLLINS, C.B., JOHNSON B.W., Phys. Rev. A, **12**, 4, 1425—1431 (1975).
365. COLLINS, C.B., CURRY I.M., MÎRZA, M.Y., JOHNSON B.W., POPESCU, D., POPESCU, I., *Int. Conf. on Physics of Electronic and Atomic Collisions*, Seattle, S.U.A., **24—30** *VII*, p. 475—476 (1975).
366. CURRY, I.M., COLLINS, C.B., MÎRZA, M.Y., POPESCU, D., POPESCU, I.I., Opt. Comm., **16**, 2 (1976).
367. POPESCU, A., NICULESCU, N., MUSA, G., Int. J. Electron., **40**, 4, (1976).
368. COLLINS, C.B., CURRY, I..M, JOHNSON B.W., MÎRZA, M.Y., POPESCU, D., POPESCU, I., Phys. Rev. A, **14**, 5 (1977).
369. COLLINS, C.B., OLARIU, S., PETRAȘCU, M., POPESCU, I., Phys. Rev. Lett., **42**, 21 (1979).
370. MUSA, G., POPESCU, A., Phys. Lett. A, **49** *A*, 2 (1974).
371. MUSA, G., POPESCU, A., Rev. Roum. Phys., **20**, 1 (1975).
372. MUSA, G., BALTAG, A., NĂSTASE, L., Rev. Roum. Phys., **20**, 1 (1975).
373. APOSTOL, I.D., DRĂGULINESCU, D., GRIGORIU, C., MIHĂILESCU, I.N., MORJAN, I., NIȚOI, A., POPESCU, I.M., TATU, V.S., St. Cerc. Fiz., 27, 4, 407 (1975)
374. VASILIU, V., St. Cerc. Fiz., **26**, 4, 407 (1974).
375. VASILIU, V., NOVGORODOV, M.Z., SVIRIDOV, A.G., SOBOLEV, N.N., St. Cerc. Fiz., **26**, 2 (1974).
376. VASILIU, V., NOVGORODOV, M.Z., SVIRIDOV, A.G., SOBOLEV, N.N., St. Cerc. Fiz., **26**, 4 (1974).
377. COJOCARU, E., UDREA, M., Rev. Roum. Phys., **20**, 5 (1975).
378. PASCU, M.L., PASCU, A., DUMBRĂVEANU, G., CONSTANTINESCU, A., Rev. Roum. Phys., **23**, 9 (1978).
379. ȘTEFĂNESCU, E.N., STERIAN, P.E., POPESCU, M.I., Rev. Roum. Phys., **31**, 4, (1986).
380. ABRAHAM, E., BULLOUGH, R.K., HASSAN, S.S., Opt. Commun., **29**, (1979).
381. REID, M., McNEIL, K.J., WALLS, D.F., Phys. Rev., A, **24**, 1 (1981).
382. BONIFACIO, R., (edtior) — *Dissipative Systems in Quantum Optics*, Springer — Verlag, Berlin—Heidelberg — New York, 1982.
383. MILLEA, L. — Int. Conf. TQE, Bucharest, 2 — 6 sept. 1985.
384. Mc CALL, S. L., GIBBS, H. M., Topics in Current Physics, **27**, (1982).
385. LUGIATO, L. A. „Progres, in Optics", **XXXI**, (1984).
386. ENGLAND, J—C., SNAPP, R. R., SCHIEVE, W. C., Progress in Optics, **XXXI**, (1984).
387. ABRAHAM, E., HASAN, S,S., Opt. Commun., **35**, (1980)
388. BONIFACIO, R. and LUGIATO, L. A., Lett Nuovo Cim., **21**, (1981)
389 McCALL, S. L., GIBBS, H. M. Opt. Commun., **33**, (1980).
390. AGRAWAL, G. P., CARMICHAEL, H. J., Optica Acta, vol. **27**, (1980).
391. HÄNSCH, T. W., SHAHIN, I. S., SCHAWLOW, A. L., Phys. Rev. Letters, **27**, (1971).
392. ELIAS, L. R., MADEY J., Phys. Rev. Letters, **36**, (1976).
393. POPESCU, I. M., STERIAN, P. E., *Noi dimensiuni ale revoluției științifie și tehnice* (coord. S. Stoichiță, P. Sterian), Editura științifică și Enciclopedică, București, (1988).
394. STERIAN, P. E., POPESCU I. M. STEFĂNESCU, E.N., *Noi dimensiuni ale revoluției științifice și tehnice* (coord. S. Stoichiță, P. Sterian), Editura Științifică și Enciclopedică, București (1988).
395. POPESCU, I.M., STERIAN, P.E., PODOLEANU, A.Gh., ȘTEFĂNESCU, E.N., VLAD, I.V., DOROBANȚU, I.A., ȚIBULEAC, S., Revue Roumaine de Physique, Tome **33**, No. 4—6, Bucharest (1988).

396. STERIAN, P.E., RANCU, O., DOROBANŢU, I.A., A patra Conferinţă de Electronică, Telecomunicaţii, Automatică şi Calculatoare, CNETAC 88, 7—9 decembrie, Bucureşti (1988).

397. STERIAN, P.E., PUŞCAŞ, N.N., IRIMESCU, D., A patra Conferinţă de Electronică Telecomunicaţii, Automatică şi Calculatoare, CNETAC 88, 7—9 decembrie, Bucureşti (1988).

398. STERIAN, P.E., PODOLEANU, A.Gh., PUŞCAŞ, N.N., POPESCU, I.M., NEMEŞ G., GRIGORESCU, R., Third International Conference *Trends in Quantum, Electronics*, Bucharest — Romania, 29 aug.—3 sept., (1988).

399. POPESCU, I.M., STERIAN, P.E., PUŞCAŞ, N.N., IRIMESCU, D., Third International Conference *Trends in Quantum Electronics*, Bucharest — Romania, 29 aug.—3 sept., (1988).

400. POPESCU, I.M., PUŞCAŞ, N.N., STERIAN, P.E., IRIMESCU, D., Proceedings SPIE, International Society for Optical Engineering, TQE-88 (editori Ursu I., Prohorov A.M.) vol. **1033**, 1989 (in print).

401. STERIAN, P.E., RANCU, O., POPESCU, I.M., DOROBANŢU, I.A., Proceedings SPIE, International Society for Optical Engineering, TQE-88 (editori Ursu I., Prohorov A.M.) vol. **1033**, 1989 (in print).